



# Rhéologie des polymères fondus à hauts taux de cisaillement : application à la microinjection

Cheima Mnekbi Djebali

## ► To cite this version:

Cheima Mnekbi Djebali. Rhéologie des polymères fondus à hauts taux de cisaillement : application à la microinjection. Autre. Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2012. Français. NNT : 2012ENMP0038 . pastel-00820185

**HAL Id: pastel-00820185**

**<https://pastel.archives-ouvertes.fr/pastel-00820185>**

Submitted on 3 May 2013

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

École doctorale n° 364 : Sciences Fondamentales et Appliquées

**Doctorat ParisTech**

**T H È S E**

pour obtenir le grade de docteur délivré par

**l'École nationale supérieure des mines de Paris**

**Spécialité « Sciences et Génie des Matériaux »**

*présentée et soutenue publiquement par*

**Cheïma MNEKBI DJEBALI**

le 7 décembre 2012

**Rhéologie des polymères fondus à hauts taux de cisaillement ; application à la microinjection**

Directeur de thèse : **Michel Vincent**

**Jury**

**M. Rémi DETERRE**, Professeur, OPERP, IUT Nantes  
**M. Christian CARROT**, Professeur, IMP, UFR des Sciences St-Etienne  
**M. Gilles REGNIER**, Professeur, PIMM, Art et Métiers ParisTech  
**M. Jean-François AGASSANT**, Professeur, CEMEF, Mines ParisTech  
**M. Michel VINCENT**, Directeur de recherche CNRS, CEMEF, Mines ParisTech  
**M. Pierre AVENAS**

Président  
Rapporteur  
Rapporteur  
Examineur  
Examineur  
Membre Invité



1	Introduction Générale.....	6
1.1	Microinjection des polymères .....	6
1.2	Rhéologie des polymères à hauts taux de cisaillement.....	6
1.3	Objectifs de l'étude.....	6
1.4	Cadre de l'étude.....	7
2	Chapitre Bibliographique .....	10
2.1	Microinjection .....	10
2.1.1	Technologie .....	10
2.1.1.1	Pièces réalisées en microinjection .....	10
2.1.1.2	Matériaux pour la microinjection .....	12
2.1.1.3	Presses de microinjection .....	13
2.1.2	Conditions extrêmes .....	13
2.1.2.1	Hautes vitesses.....	14
2.1.2.2	Hauts taux de cisaillement et fortes pressions .....	14
2.1.2.3	Hautes températures du moule et du polymère .....	14
2.1.2.4	Etat de surface du moule .....	15
2.1.3	Simulation de la microinjection des polymères .....	16
2.2	Rhéologie à haut taux de cisaillement .....	21
2.2.1	Instabilités de l'écoulement et glissement à la paroi .....	21
2.2.1.1	Défauts d'extrusion.....	21
2.2.1.2	Glissement à la paroi .....	23
2.2.2	Mesures de rhéologie spécifiques à la microinjection.....	25
2.2.2.1	Techniques de mesures rhéologiques .....	25
2.2.2.2	Viscosité dans les conditions extrêmes .....	34
2.2.3	Modélisation de la rhéologie à haut taux de cisaillement .....	40
2.2.3.1	Thermo et piezo dépendance de la viscosité .....	40
2.2.3.2	Glissement à la paroi .....	41
2.3	Synthèse.....	42
3	Chapitre Caractérisation rhéologique.....	44
3.1	Matériaux étudiés .....	44
3.1.1	Polyéthylène haute densité.....	44
3.1.2	Polyméthacrylate de méthyle .....	45
3.2	Rhéométrie oscillatoire dynamique .....	46
3.2.1	Conditions des essais.....	46



3.2.2	Domaine linéaire .....	47
3.2.3	Stabilité.....	48
3.2.4	Résultats .....	50
3.2.4.1	PEHD.....	50
3.2.4.2	PMMA .....	53
3.3	Rhéométrie capillaire.....	57
3.3.1	Description du matériel de mesure.....	57
3.3.2	Conditions de mesure .....	59
3.3.3	Courbes d'écoulement, défauts et thermique .....	61
3.3.3.1	Paliers de pression .....	61
3.3.3.2	Défauts d'extrusion.....	63
3.3.3.3	Courbes d'écoulement .....	64
3.3.3.4	Mesures de température dans le capillaire.....	68
3.3.4	Résultats PEHD.....	69
3.3.4.1	Courbes de Bagley.....	69
3.3.4.2	Analyse du glissement.....	72
3.3.4.3	Viscosité .....	76
3.3.5	Résultats PMMA.....	79
3.3.5.1	Courbes de Bagley.....	79
3.3.5.2	Viscosité .....	81
3.4	Données rhéologiques.....	85
3.4.1	Superposition Rhéoplast - ARES .....	86
3.4.2	Lissage de Carreau-Yasuda .....	87
3.5	Synthèse.....	90
4	Chapitre Modèle rhéologique.....	94
4.1	Cadre du modèle .....	94
4.1.1	Modèle mécanique .....	94
4.1.2	Modèle thermique .....	96
4.1.3	Lois de comportement .....	96
4.1.3.1	Comportement rhéologique .....	96
4.1.3.2	Masse volumique.....	103
4.1.4	Conditions aux limites et initiales .....	106
4.2	Equations .....	106
4.2.1	Détermination des champs de vitesse et pression sans glissement .....	106

4.2.1.1	Equation d'équilibre .....	106
4.2.1.2	Analyse incompressible .....	107
4.2.1.3	Analyse compressible .....	108
4.2.2	Prise en compte du glissement à la paroi .....	109
4.2.2.1	Analyse incompressible .....	110
4.2.2.2	Analyse compressible .....	111
4.3	Description du modèle numérique.....	113
4.3.1	Organigramme.....	113
4.3.2	Test de la discrétisation .....	115
4.3.2.1	Données du calcul.....	115
4.3.2.2	Discrétisation .....	116
4.3.2.3	Choix des conditions aux limites thermiques .....	118
4.3.2.4	Sensibilité du calcul aux constantes de la loi de glissement.....	120
4.4	Influence des phénomènes physiques .....	123
4.4.1	Données utilisées .....	123
4.4.2	Calcul avec une viscosité thermodépendante.....	125
4.4.3	Calcul compressible, piezo- et thermo- dépendant .....	131
4.4.4	Incidence du glissement à la paroi .....	135
4.4.5	Récapitulatif des incidences des hypothèses .....	142
4.5	Analyse des essais rhéologiques .....	146
4.6	Synthèse.....	155
5	Chapitre Microinjection .....	159
5.1	Etude expérimentale .....	159
5.1.1	Presse de microinjection.....	159
5.1.1.1	Conception de la presse .....	159
5.1.1.2	Mode de fonctionnement de la presse .....	160
5.1.1.3	Description de la presse.....	161
5.1.1.4	Moule de microinjection et instrumentation.....	163
5.1.1.5	Acquisition des données .....	164
5.1.1.6	Conditions de mise en œuvre.....	165
5.1.2	Description des micro-pièces injectées .....	166
5.1.2.1	Volume de l'empreinte du moule .....	166
5.1.2.2	Epaisseurs de la paroi mince .....	167
5.1.2.3	Sous remplissages des pièces injectées .....	171

5.1.3	Analyse des enregistrements .....	172
5.1.4	Exploitation des résultats de microinjection .....	176
5.1.4.1	Profils de pression .....	176
5.1.4.2	Profils de température / Effet de la dissipation de chaleur .....	177
5.1.4.3	Détermination des débits d'injection .....	177
5.2	Simulation de la microinjection.....	179
5.2.1	Présentation de Rem3D .....	179
5.2.2	Maillage.....	180
5.2.3	Visualisation des résultats Rem3D.....	182
5.2.3.1	Données du calcul.....	182
5.2.3.2	Remplissage.....	183
5.2.3.3	Pression.....	184
5.2.3.4	Température.....	187
5.2.3.5	Profils de vitesses .....	189
5.3	Confrontation avec les essais de microinjection.....	191
5.3.1	Paramètres d'entrée .....	191
5.3.2	Confrontation sur la forme du front de matière.....	192
5.3.3	Effet de la compressibilité sur le calcul .....	193
5.3.4	Confrontations sur les pressions – PEHD .....	195
5.3.4.1	Détermination des débits pour le calcul du PEHD .....	195
5.3.4.2	Confrontation calcul – mesures .....	197
5.3.5	Confrontation pour le PMMA .....	198
5.3.5.1	Recherche des débits optimaux .....	198
5.4	Synthèse.....	201
6	Conclusion Générale .....	203

# **1 Introduction Générale**

## **1.1 Microinjection des polymères**

La microinjection est une technologie émergente qui concerne de plus en plus de produits dans le domaine médical, la connectique, l'horlogerie, la mécanique ... Les industriels s'intéressent au coût et à la fiabilité de la production des pièces par microinjection. Ce procédé présente toutefois des challenges techniques et scientifiques. En effet, cela nécessite des innovations sur les outils de transformation très précis, la fabrication de moules avec des tolérances très exigeantes, le développement de logiciels de simulation adaptés... De plus, l'écoulement dans des microcavités génère des comportements particuliers de la matière. La compréhension de la physique des polymères est à prévoir dans les conditions extrêmes, à savoir la rhéologie à hauts taux de cisaillement.

## **1.2 Rhéologie des polymères à hauts taux de cisaillement**

L'étude de la rhéologie à hauts taux de cisaillement des polymères nécessite l'utilisation de techniques de mesures spécifiques. Afin d'atteindre des taux de cisaillement élevés, des rhéomètres classiques doivent être adaptés pour permettre d'atteindre de fortes pressions. Ils sont équipés soit de micro-filières, soit de micro-entrefers.

Le dépouillement des résultats rhéologiques nécessite également des réflexions sur le comportement des matériaux car, en plus de la stabilité de l'écoulement et (ou) la présence de glissement à la paroi, nous devons développer des modèles physiques intégrant la thermodépendance et la piezodépendance de la viscosité, un écoulement compressible, et les effets de la thermique.

## **1.3 Objectifs de l'étude**

L'objectif de ce travail est d'aider à comprendre le comportement de la matière dans des conditions de transformation extrêmes comme c'est le cas pour le procédé de microinjection. Pour cela, nous étudions d'abord la rhéologie à hauts taux de cisaillement par le biais de caractérisations expérimentales et d'une modélisation des équations physiques. Par la suite,

nous étudions la microinjection via des analyses expérimentales et une simulation numérique par éléments finis.

La thèse est articulée autour de quatre chapitres organisés de la manière suivante:

Le premier chapitre est dédié à l'état de l'art sur les deux sujets qui nous concernent dans cette étude, à savoir le procédé de microinjection et la rhéologie à hauts taux de cisaillement.

Dans le deuxième chapitre, nous présentons les caractérisations rhéologiques à hauts taux de cisaillement de deux polymères, en ayant recours à deux rhéomètres, un rhéomètre plan-plan dynamique et un rhéomètre capillaire utilisé dans des conditions extrêmes. Nous cherchons à obtenir des courbes de viscosité pour des taux de déformation allant jusqu'à  $10^6 \text{ s}^{-1}$ .

Le troisième chapitre est consacré à la description du modèle mathématique et physique de l'écoulement dans un capillaire. Nous discutons les phénomènes physiques mis en jeu et les intégrons dans un programme de calcul Matlab pour voir l'effet de chacun ou de certaines combinaisons de phénomènes sur les résultats de la rhéologie. Nous testons et validons nos hypothèses en les comparant aux données expérimentales du deuxième chapitre.

Enfin, dans le quatrième chapitre, nous réalisons des essais de microinjection à l'aide de la presse et du moule conçus pour le projet de recherche. Nous étudions les résultats des enregistrements dans un moule instrumenté.

Par la suite, nous réalisons une étude de simulation 3D de la microinjection, à l'aide du logiciel Rem3D. Le but est de confronter les résultats de simulation, nourris avec les données rhéologiques déterminées précédemment, aux résultats des expériences dans différents cas de mise en œuvre.

## **1.4 Cadre de l'étude**

Le travail présenté dans cette thèse a été réalisé dans le cadre du projet de recherche « Microconnect » financé par l'Agence Nationale de Recherche (ANR) sur la microinjection des thermoplastiques. Une synergie a été créée entre les partenaires suivants :

- le Centre de Mise en Forme des Matériaux (CEMEF) de Mines ParisTech,

- le Laboratoire d'Ingénierie des Matériaux (LIM), devenu Procédés et Ingénierie en Mécanique et Matériaux (PIMM) de Arts et Métiers - ParisTech,
- la société Getelec.

Nous avons contribué à la conception d'une presse pour la microinjection en se basant sur le principe déjà existant de fluidification de la matière par cisaillement du « Rhéoplast ». La presse a été conçue et réalisée par Getelec. Les campagnes d'essais sur la presse de microinjection ont été effectuées au LIM, qui avait en charge la détermination de la microstructure et des propriétés des pièces microinjectées.



## **2 Chapitre Bibliographique**

Dans ce chapitre, nous présentons une synthèse bibliographique sur les travaux qui ont été réalisés dans le domaine de la microinjection et de la rhéologie à fort taux de cisaillement ou en faible entrefer. Tout d'abord, nous exposons les moyens technologiques et les enjeux relatifs à ce procédé innovant et de haute valeur ajoutée. Par la suite, nous passons en revue les défis techniques et scientifiques relatifs à la microinjection. Parmi les défis scientifiques, nous nous intéressons particulièrement à la rhéologie dans des conditions de microinjection, plus explicitement la rhéologie à hauts taux de cisaillement. Nous détaillons alors les phénomènes physiques mis en jeu lors de telles sollicitations et nous discutons les travaux qui ont été réalisés dans ce domaine.

### **2.1 Microinjection**

#### **2.1.1 Technologie**

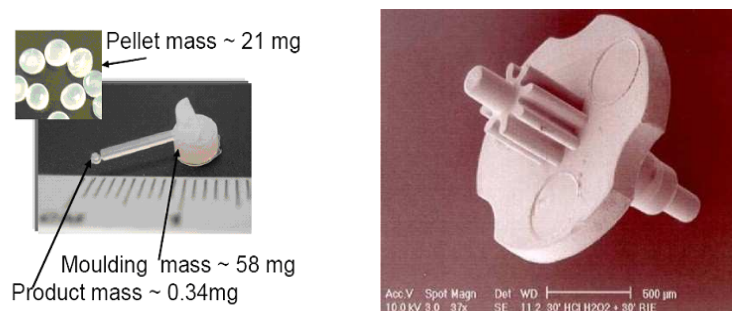
Le procédé d'injection est intéressant car il permet la fabrication de pièces qui peuvent être de formes très complexes, et ce à des vitesses de production importantes et avec une bonne reproductibilité des détails dans les pièces. Le savoir-faire dans ce secteur de mise en forme des polymères nécessite la maîtrise de certains mécanismes, à savoir le contrôle des pressions d'injection, des vitesses de cisaillement, de la plastification du polymère, de la température du moule, du temps d'injection, ...

La miniaturisation concerne de plus en plus de domaines et l'injection des plastiques pour des microsystèmes montre graduellement son grand potentiel commercial. La microinjection est un domaine émergent qui est une évolution de l'injection de polymères conventionnelle sans pour autant en être une réplique à plus petite taille.

##### **2.1.1.1 Pièces réalisées en microinjection**

Sous le vocable microinjection, nous distinguons en général deux types de produits, d'une part des pièces de taille standard, mais avec des micro-détails et des micro-pièces de dimension maximale inférieure au millimètre, avec un poids en dessous du milligramme et/ou avec une épaisseur pouvant descendre jusqu'à quelques dizaines de micromètres, Figure 2-1.



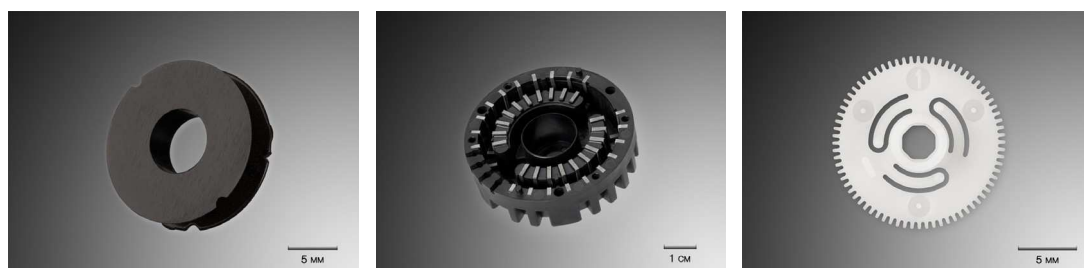


**Figure 2-1 : Exemple de produits microinjectés, (à gauche) avec le système d'alimentation attaché et (à droite) Micromultiplicateur 0,8 mg en POM (source Battenfeld).**

La recherche dans ce domaine est orientée vers des applications commerciales dans un large éventail de secteurs comprenant les systèmes micro-électro-mécaniques (MEMS) où la demande est croissante pour la miniaturisation de produits. Parmi les industriels spécialisés dans la sous-traitance de la conception et la fabrication de pièces microtechniques, citons CG-TEC, ISA France et Microsystems. Ils répondent aux besoins des marchés les plus actifs en microinjection qui sont les suivants :

- L'automobile, avec les micro-interrupteurs, les connecteurs et les capteurs d'airbag.
- L'informatique, avec les connecteurs et les têtes d'encre d'imprimante.
- La télécommunication avec les connecteurs de fibre optique.
- L'électronique et l'optoélectronique avec les micro-interrupteurs et les microcircuits optiques, les connecteurs de précision, les micromoteurs, Figure 2-2.
- Le médical avec les implants, les dispositifs d'aide à l'audition, l'appareillage dentaire, les dispositifs d'analyse et pour blocs opératoires, Figure 2-3.
- L'horlogerie avec les microengrenages, les rotors, les verrous, Figure 2-4.

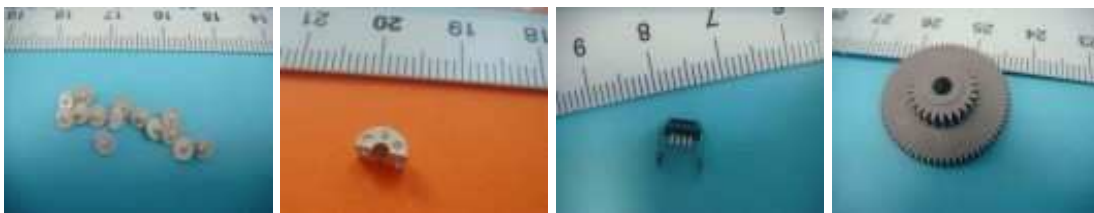
Ceci mène à des développements passionnants dans les matériaux et la technologie de transformation.



**Figure 2-2 : Application de la microinjection en électronique : Corps de bobine en PPS ; moteur pas à pas en PPS ; pignon court en ABS PC (source CG-TEC)**



**Figure 2-3 : Application de la microinjection dans le domaine médical : connecteurs de moteur pour appareillage dentaire en PA ; encapsulage pour puce RFID en PEEK ; implant auditif (source CG-TEC)**



**Figure 2-4 : Application de la microinjection en horlogerie : microrouages ; capsule ; connecteur ; rouage (source ISA France)**

### 2.1.1.2 Matériaux pour la microinjection

La majorité des produits microinjectés ont des propriétés mécaniques ou optiques de pointe (Coates et al., 2007). Par conséquent, les résines typiques adoptées sont des thermoplastiques techniques, tels que les cristaux liquides polymères (LCP), les polyoxyméthylènes (POM), les polymères cyclo oléfiniques (COP) et les polyétheréthercétone (PEEK). Le retrait de ces polymères est très faible ce qui assure le respect de la forme des petits détails et la stabilité dimensionnelle des produits microinjectés.

Les matières chargées conventionnelles avec des fibres de verre sont difficiles à utiliser en microinjection. C'est pour cela que des nanocomposites, avec nanotubes de carbone de 10 nm de diamètre, sont utilisés. Ils apportent une haute résistance mécanique et au choc au produit final.

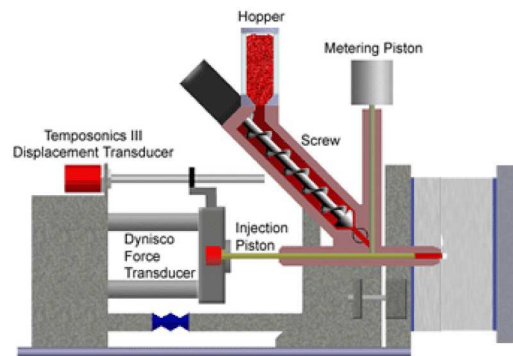
Pour les implants chirurgicaux bio-absorbables qui seront détruits dans le corps après une période déterminée, les matériaux utilisés sont les acides polyglycoliques (PGA) et les acides polylactiques (PLA). Ces matériaux sont très sensibles à la dégradation thermique, c'est pourquoi une injection rapide et avec des petits volumes à transférer est favorable à leur mise en œuvre.

### 2.1.1.3 Presses de microinjection

Il faut préalablement préciser que la microinjection ne consiste pas en une reproduction du procédé d'injection conventionnel avec une simple réduction d'échelle (Whiteside et al., 2003 ; Giboz et al., 2007). Une rupture technologique s'impose concernant le développement de machines adaptées et l'usinage des moules. Les presses d'injection conventionnelles sont peu convenables pour la fabrication de micro-pièces :

- les vis de plastification classiques ont des diamètres trop importants par rapport au volume à injecter. Le temps de séjour du matériau devient élevé et il peut se dégrader ;
- un énorme pourcentage de matière injectée est gaspillé dans le système d'alimentation ;
- les débits délivrés par la presse ne peuvent pas assurer un remplissage en un temps très court des micro-pièces.

Une nouvelle génération de presses dédiées à la microinjection a vu le jour (Zhao et al., 2003). Elles utilisent une unité de plastification et une unité d'injection séparées. Une troisième unité de dosage peut aussi être considérée, Figure 2-5



**Figure 2-5: Presse Battenfeld Microsystem 50 avec 3 unités séparées : plastification, dosage et injection (source Battenfeld).**

### 2.1.2 Conditions extrêmes

En plus du défi technologique, un défi scientifique est aussi à relever. La connaissance de la rhéologie des polymères à haute vitesse de cisaillement, le développement des contraintes résiduelles et les propriétés finales des produits sont les enjeux scientifiques de la microinjection.

### 2.1.2.1 Hautes vitesses

Le rapport surface sur volume des micro-pièces est très important, ce qui nécessite des vitesses d'injection très élevées afin d'éviter la solidification prématurée du polymère lors de l'injection et l'obtention de pièces incomplètes. D'après Giboz et al. (2007) une machine comme la presse Battenfeld Microsystem 50 permet de délivrer une vitesse d'injection de  $760 \text{ mm.s}^{-1}$  en utilisant une vis de plastification de diamètre 14 mm (débit d'injection de l'ordre de  $117 \text{ cm}^3.\text{s}^{-1}$ ), tandis qu'avec la presse Lawton Sesame Nanomollder, les vitesses d'injection atteintes sont de  $1200 \text{ mm.s}^{-1}$  en utilisant un piston de diamètre 10 mm (débit de  $94. \text{ cm}^3.\text{s}^{-1}$ ). Yokoi et al. (2006) utilisent une presse à ultra-haute vitesse UHSIM développée par Nissei Plastic Industrial pour laquelle la vitesse d'injection peut monter jusqu'à  $1000 \text{ mm.s}^{-1}$  avec une vis de diamètre 32 mm (débit de  $800 \text{ cm}^3.\text{s}^{-1}$ ), même si avec un tel diamètre de vis le volume de matière plastifiée est assez important. Par comparaison, une presse classique peut aller jusqu'à des débits de l'ordre de quelques centaines de  $\text{cm}^3.\text{s}^{-1}$ , mais pour des volumes au moins dix fois plus grands.

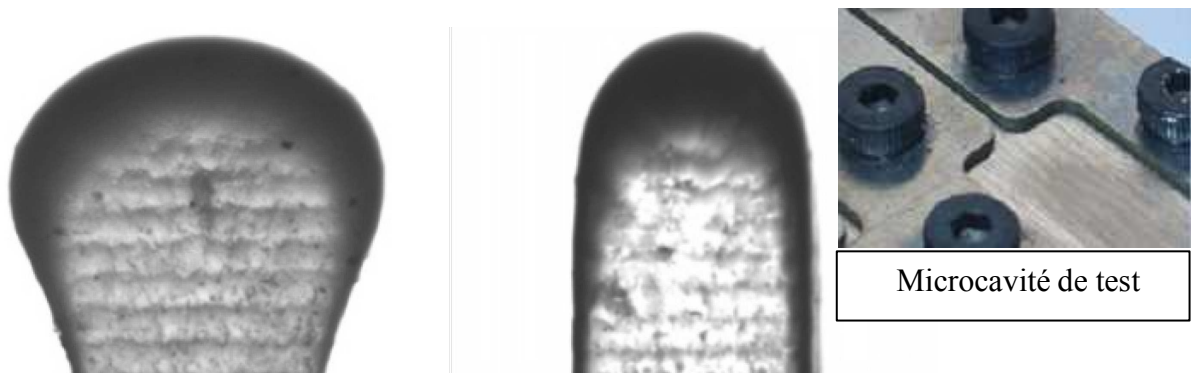
### 2.1.2.2 Hauts taux de cisaillement et fortes pressions

La plupart des études sur la microinjection mentionnent de très forts taux de cisaillement et pressions. Une des géométries utilisée par Whiteside et al. (2003) est une plaque de dimension  $25 \times 2,5 \times 0,25 \text{ mm}^3$ . Une simple analyse pseudoplastique isotherme conduit à un taux de cisaillement de l'ordre de  $10^5 \text{ s}^{-1}$ . Coates et al. (2007) mentionnent des valeurs supérieures à  $10^6 \text{ s}^{-1}$ . Les niveaux de pression délivrés par les machines, d'après Giboz et al. (2007), peuvent atteindre 3600 bar. Cependant, nous ne pouvons considérer que ces niveaux sont atteints dans les pièces compte tenu des pertes de charge dans les canaux. Whiteside et al. (2003) mesurent les pics de pression dans la cavité à l'aide d'un capteur piézoélectrique, les maximums trouvés sont de l'ordre de 500 bar pour un maximum de pression d'injection en tête de vis de 1000 bar.

### 2.1.2.3 Hautes températures du moule et du polymère

En plus de la vitesse d'injection, les auteurs font varier les températures du polymère et du moule pour assurer le remplissage des micro-pièces. Despa et al. (1999) trouvent que, parmi les différents paramètres de mise en œuvre, la température du moule est celle qui influence le plus la capacité de pénétration du fluide dans des cavités étroites. Ils préconisent une température du moule proche de la température de solidification. Ils trouvent également que le fait d'appliquer le vide dans le moule facilite l'écoulement. Liou et Chen (2006) injectent du

PMMA en utilisant des températures de moule très élevées (de 120 °C jusqu'à 155 °C) pour un meilleur aspect des pièces microinjectées. Ces températures de moule sont obtenues par des techniques de chauffe et de refroidissement rapides de la surface de l'empreinte dans le moule. Toutefois, ils rencontrent des problèmes d'emprisonnement d'air qui créent des défauts et entraînent un surcoût de la production. Griffiths et al. (2007) étudient l'effet des paramètres d'injection, à savoir les températures du polymère et du moule et la vitesse d'injection, sur les longueurs d'écoulement dans une paroi mince. A forte vitesse d'injection et à faible température du polymère, ces auteurs montrent l'existence de glissement, à partir de la visualisation de lignes équidistantes perpendiculaires à l'écoulement et qu'ils considèrent équivalentes à un écoulement bouchon ou de 'stick slip', Figure 2-6. Ce phénomène induit de fortes contraintes de cisaillement selon les auteurs.



**Figure 2-6 : Photos illustrant l'aspect de la pièce injectée (incomplète) à faible température du moule (80 °C) et à forte vitesse d'injection (500 mm/s) : ABS (à gauche) et PC (à droite) [Griffiths et al., 2007].**

#### **2.1.2.4 Etat de surface du moule**

Zhang. et al. (2008) étudient l'effet de l'état de surface du moule sur l'écoulement d'un polymère (POM Ultraform W2320 003) en paroi mince (de 250  $\mu\text{m}$ ) et l'aptitude au remplissage en fonction de la rugosité de la surface du moule pour des paramètres de mise en œuvre identiques. Ils utilisent un disque avec deux moitiés de surface ayant des rugosités différentes, Figure 2-7. Plus la rugosité est importante, plus importante est la résistance à l'écoulement. Cette dépendance est atténuée pour des températures de moules élevées.

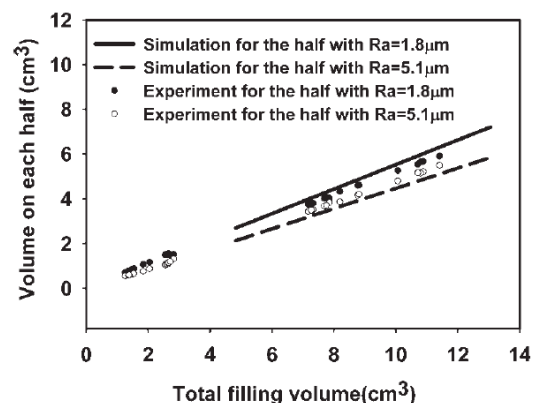
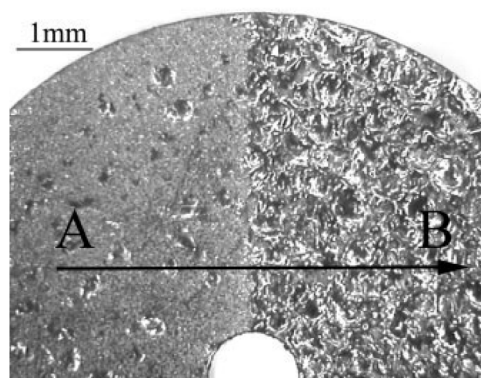


Figure 2-7 : Image des demi-surfaces du disque A et B avec les rugosités respectives  $Ra=1.8 \mu m$  et  $Ra = 5.1 \mu m$  (à gauche) et comparaison de la capacité de remplissage de ces deux volumes [Zhang et al., 2008].

### 2.1.3 Simulation de la microinjection des polymères

Des confrontations ont été réalisées entre des essais de microinjection et des simulations numériques. Yu et al. (2002) injectent par le centre un disque de diamètre 11,94 cm et d'épaisseur 1,12 mm contenant trois inserts circulaires de diamètre 5.08 cm, Figure 2-8. L'insert du bas comprend trois microcavités, sous forme d'éprouvettes, de profondeur/largeur respectives 340/170, 220/120 et 92/57  $\mu m$ , Figure 2-8. Ils utilisent un logiciel de simulation 2,5D suivant le modèle Hele-Shaw (C-Mold) et trouvent des divergences avec la réalité en terme de forme des fronts de matière pour différentes vitesses d'injection, Figure 2-9. Ils expliquent ceci par le fait que la variation des épaisseurs dans les microformes n'est pas prise en compte dans le modèle Hele-Shaw.

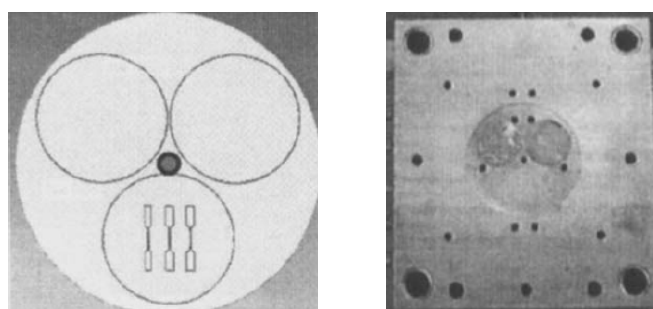
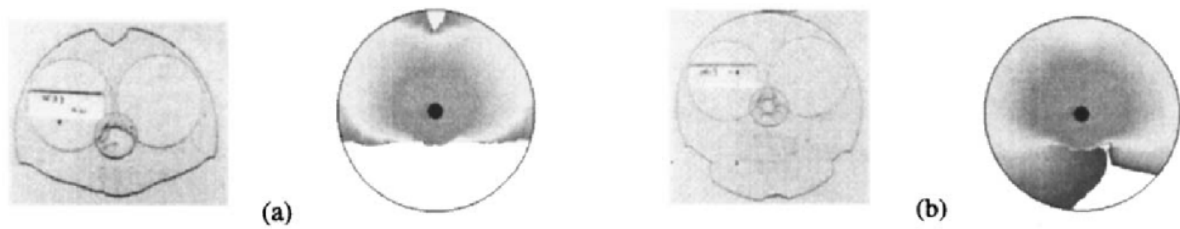
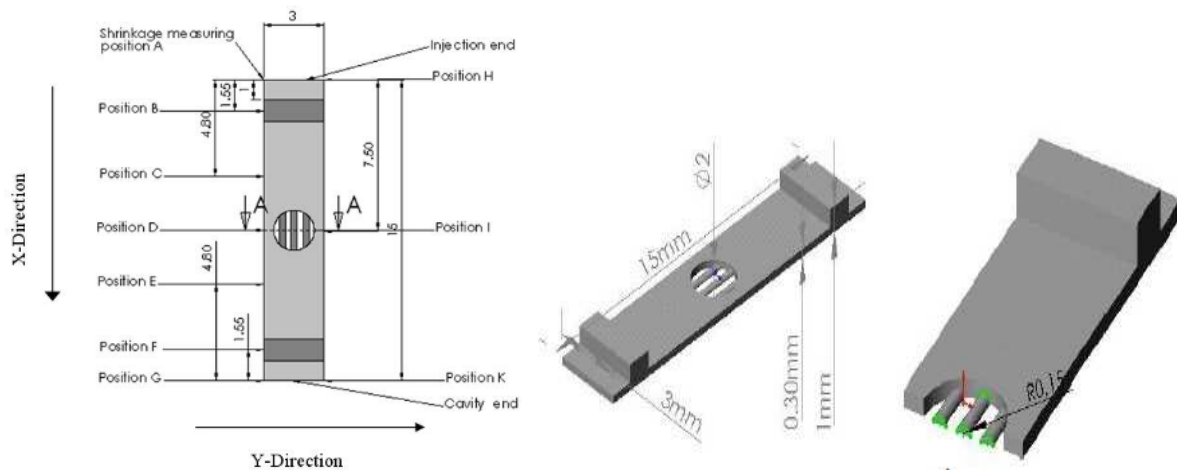


Figure 2-8 : Géométrie de la pièce avec la position des inserts [Yu et al, 2002.]



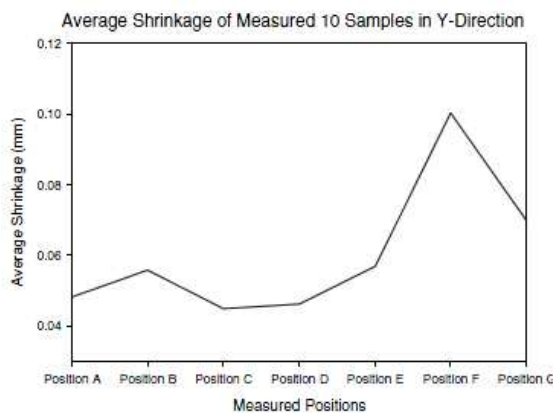
**Figure 2-9 : Comparaison des fronts de matière expérimentaux (à gauche) et simulés (à droite) en fonction du taux de remplissage à 80 % (a) et à 95 % (b) [Yu et al, 2002.]**

Chu et al. (2007). utilisent une presse de microinjection (Battenfeld Microsystem 50) et un logiciel de simulation (Moldflow 6.0) en deux versions de solveur (3D et 2,5D). Des mesures expérimentales du retrait de la pièce dans une direction donnée ont été réalisées et comparées à des calculs numériques du retrait, Figure 2-10 et Figure 2-11. La courbe expérimentale est définie par le retrait moyen (en mm) en fonction des positions données sur la pièce. La courbe des résultats de simulation est définie par le retrait volumique (en %) en fonction de la longueur de la pièce (en mm). La même évolution du retrait que dans l'expérience est retrouvée dans le calcul mais, d'un point de vue quantitatif, le calcul surestime la valeur du retrait.

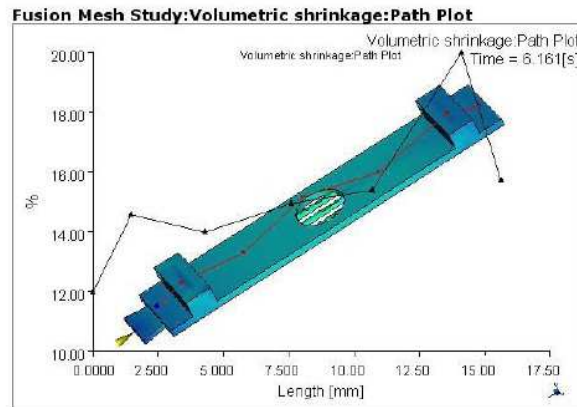


**Figure 2-10 : Géométrie de la plaque et positions des points de mesures du retrait [Chu et al., 2007].**





(a)



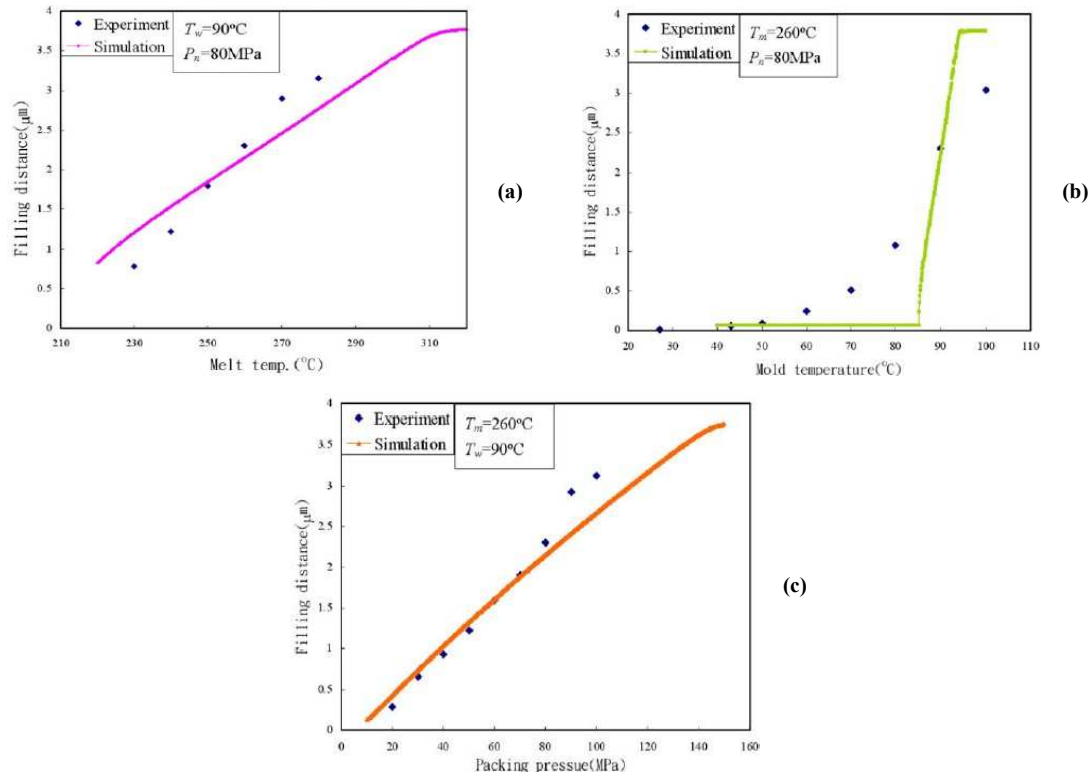
(b)

**Figure 2-11 : Evolution du retrait suivant l'axe Y : mesures expérimentales (a) et simulation numérique (b), [Chu et al., 2007].**

Lin et Yang (2009) utilisent une presse de microinjection (TR05EH, Sodick) avec une unité de plastification et une unité d'injection séparées. La géométrie étudiée, de dimension  $10 \times 10 \times 1,3 \text{ mm}^3$ , comprend des micro-détails de dimension  $4 \times 4 \times 6 \text{ }\mu\text{m}^3$ . Le matériau utilisé est le PMMA. Les auteurs regardent la capacité à remplir l'empreinte en faisant varier les paramètres de mise en œuvre, à savoir la température du polymère, la température du moule et la pression de compactage. Ils comparent alors les résultats expérimentaux avec une simulation par éléments finis (Moldflow 3D), Figure 2-12.

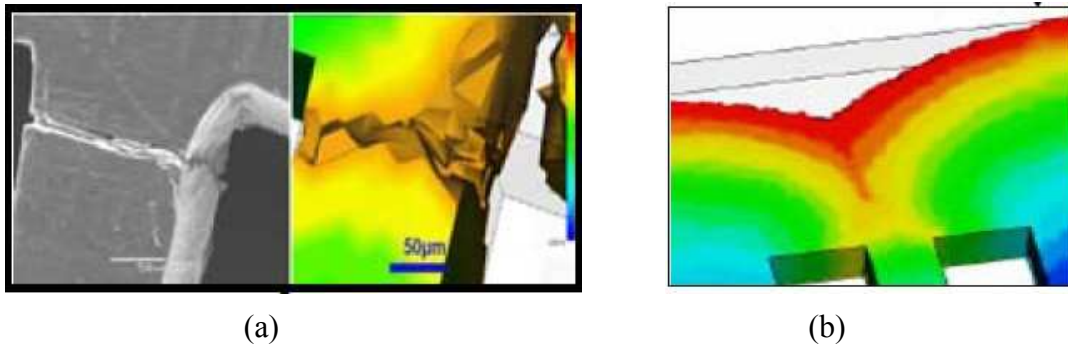
Ils montrent que, plus la température est élevée pour le polymère comme pour le moule, plus importante est la capacité de remplissage. Les résultats de simulation ne coïncident pas toujours avec les points expérimentaux. En particulier, elle ne prédit pas correctement le remplissage des microstructures.





**Figure 2-12 : Distance remplie dans la cavité en fonction respectivement, de la température du polymère (a), de la température du moule (b) et de la pression (c). (Ligne continue : simulation ; points : données expérimentales) [Lin et Yang, 2009].**

Dans des études complémentaires, Dal Molin (2007), et Gava (2009) évaluent la performance des logiciels de simulation commerciaux 3D et 2,5D (modèle Hele-Shaw) pour décrire l'écoulement dans les microcavités et les parois fines. Ils utilisent une nouvelle approche de confrontation entre l'expérience et la simulation numérique. Ils détectent les lignes de soudure des fronts de matière sur des pièces microinjectées (Battenfeld Microsystem 50) et les comparent avec les lignes de soudures prédites par la simulation (Moldflow 4.1), Figure 2-13. Ils trouvent que ces logiciels échouent à rendre compte du comportement du polymère en microinjection. Ils attribuent cela au fait que certains phénomènes comme le glissement à la paroi, les effets de surfaces, la dépendance de la viscosité avec la pression... ne sont pas pris en compte.



**Figure 2-13 : Comparaison entre un résultat expérimental ((a) à gauche) et la simulation ((a) à droite et (b)) de la formation des lignes de soudures sur une pièce de microinjection [Dal Molin, 2007 et Gava, 2009].**

Afin de mieux identifier les facteurs significatifs influençant la microinjection, des outils de simulation ont été adaptés. Yao et Kim (2002) ont adapté un logiciel de simulation utilisant le modèle Hele-Shaw. Ils introduisent une viscosité dépendant de l'entrefer de l'écoulement  $b$ , du rayon de giration des molécules  $g$  et d'un paramètre matériau  $\xi$  (constante sans dimension), selon la théorie d'Eringen et Okada (1995).

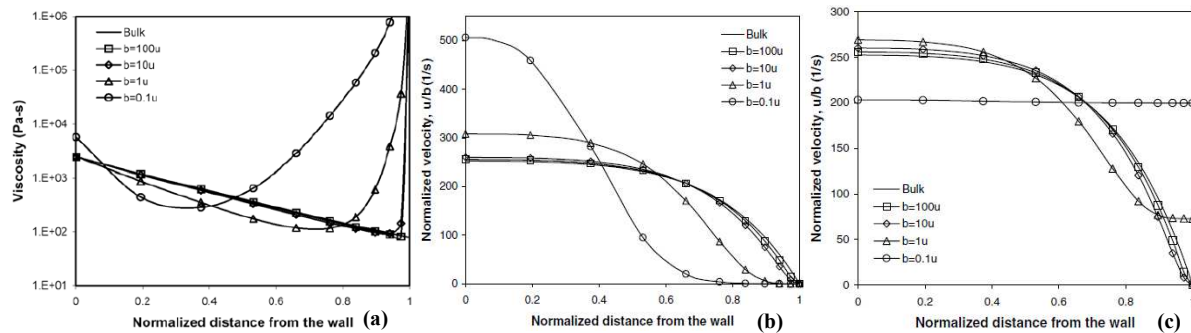
$$\eta = \eta_0(1 + \xi(g/b)^2) \quad \text{Équation 2-1}$$

Pour la simulation, ils considèrent une viscosité qui dépend aussi de la température et de la pression, ainsi qu'un glissement à la paroi selon un modèle modifié de Rosenbaum et Hatzikiriakos (1997) sous forme de loi de puissance, présenté dans le paragraphe 2.2.3.2. Ils tiennent aussi compte des effets de tension de surface, mais montrent qu'ils sont négligeables aux fortes pressions en injection.

Ils comparent des simulations d'écoulements d'un polystyrène (PS) (température de transformation 230 °C) dans une paroi mince, à 230 °C, en faisant varier l'épaisseur de celle-ci, la demi-épaisseur  $b$  varie entre 0,1 et 1000 µm, avec des pas multiples de 10. Tous les résultats sont comparés à un cas de simulation sans tenir compte des dépendances de la viscosité ni du glissement à la paroi. Dans ce cas, désigné par 'Bulk' dans les graphes, la variation de l'épaisseur de la paroi mince a un effet sur les résultats de pression et de viscosité.

En tenant compte uniquement de la viscosité spécifique, de l'équation 2-1, dans la simulation, Figure 2-14 (a,b), Yao et Kim (2002) trouvent qu'en dessous d'une certaine épaisseur de cavité  $b$  (10 µm), le profil de viscosité change et le minimum de viscosité est déplacé de la paroi vers le centre. Ceci a un effet sur le profil de vitesse qui devient quasi nulle vers la paroi

pour les épaisseurs les plus faibles (représentée sur le graphe (b) par les triangles et les cercles pour les valeurs en abscisse qui tendent vers 1 (la paroi)).



**Figure 2-14 : Effets de l'épaisseur de la microcavité dans le cas de simulations avec une viscosité spécifique (a,b) et avec un glissement à la paroi (c) [Yao et Kim, 2002].**

En tenant compte du glissement à la paroi en plus de la viscosité spécifique dans la simulation, Figure 2-14 (c), ils montrent que le glissement est dominant pour les faibles épaisseurs. Dans cette étude, il n'y a pas eu de comparaison avec des expériences.

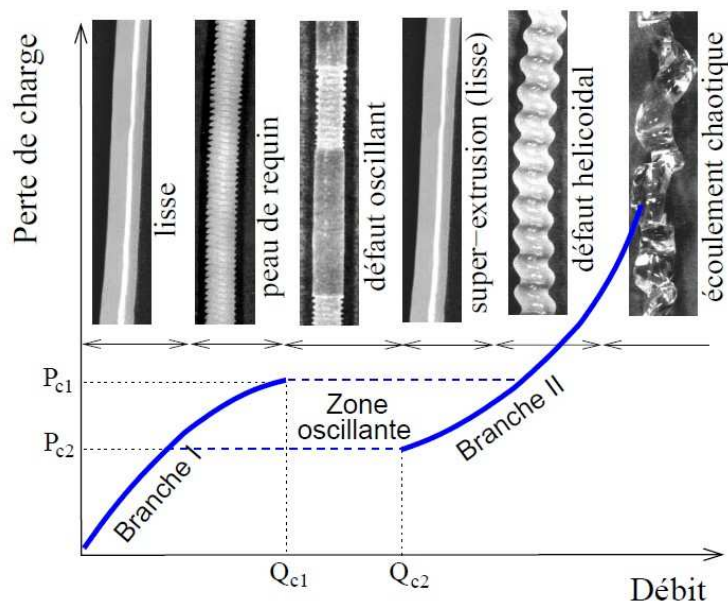
## 2.2 Rhéologie à haut taux de cisaillement

### 2.2.1 Instabilités de l'écoulement et glissement à la paroi

#### 2.2.1.1 Défauts d'extrusion

Dès que les contraintes auxquelles est soumis le polymère deviennent élevées, des instabilités lors de l'écoulement des polymères fondus sont observées à la sortie d'une filière d'extrusion. Ces instabilités sont aussi connues sous le nom de défauts d'extrusion car elles ont été largement étudiées pour comprendre le comportement de la matière lors de la mise en œuvre par extrusion (Agassant et al., 1992 ; Denn, 2001 ; Piau et al., 1995).

Pour les polymères linéaires flexibles, type PEHD, les évolutions de l'aspect de l'extrudat et de la perte de charge en fonction du débit de l'écoulement sont présentés à la Figure 2-15.



**Figure 2-15 : Aspect des extrudats d'un polyéthylène linéaire par rapport à l'évolution de la courbe d'écoulement [Robert, 2001].**

A faible taux de cisaillement et faible débit, la morphologie de l'extrudat est d'abord lisse, puis commence à apparaître une rugosité sur la surface du jonc connue sous le nom de peau de requin. A plus haut taux de cisaillement, nous observons le défaut oscillant ou bouchon (stick-slip ou spurt defect), où une succession périodique de zone lisse et de zone en peau de requin est observée, en plus d'une variation du diamètre de l'extrudat. Cette zone de défaut a été étudiée de façon intense (Durand, 1993 ; Den Doelder 1998 ; Robert, 2001). Au-delà de cette zone, l'extrudat est à nouveau lisse, puis nous observons une forme hélicoïdale plus ou moins régulière qui se dégrade au fur et à mesure que le taux de cisaillement augmente pour donner enfin un aspect chaotique.

La courbe d'écoulement présente une discontinuité au niveau de la zone oscillante qui sépare deux branches stables. Des hypothèses ont été proposées pour expliquer ce comportement combinant glissement à la paroi du polymère et compressibilité.

Pour les polymères avec des groupements latéraux importants (type PMMA), la courbe d'écoulement est continue, mais un changement de pente peut être observé à partir d'un certain débit. Pour les fort taux de cisaillement, un défaut hélicoïdal puis chaotique est progressivement observé.

### 2.2.1.2 Glissement à la paroi

Pour les faibles taux de cisaillement, branche I d'un polymère linéaire flexible, le glissement a été peu étudié et est considéré comme négligeable (El Kissi et Piau, 1991 ; Wang 1993).

En branche II, il a été supposé qu'il y a un glissement en paroi. Pour le quantifier et mieux connaître sa contribution réelle à l'écoulement, différentes méthodes de caractérisation ont été proposées (Durand 1993, Karam 1995, Robert 2001).

#### a) La méthode de Mooney

Mooney propose une méthode de quantification du glissement en postulant que la vitesse de glissement ne dépend que de la contrainte de cisaillement en paroi  $\tau_p$ . Le débit  $Q$  s'écrit comme la somme d'un débit d'écoulement visqueux et d'un débit de glissement.

$$Q = \frac{R^3}{3} \int_0^{\dot{\gamma}_p} \dot{\gamma} \tau \, d\dot{\gamma} + \tau_p V_g \quad \text{Équation 2-2}$$

où  $R$  est le rayon du capillaire et  $\dot{\gamma}$  le taux de cisaillement.

Le taux de cisaillement apparent est donc :

$$\dot{\gamma}_{app} = \frac{Q}{\pi R^3} = \frac{1}{4} \dot{\gamma}_p \left( \frac{\tau_p}{\tau} \right) + \frac{V_g}{R} = \frac{1}{4} \dot{\gamma}_p \left( \frac{\tau_p}{\tau} \right) + \dot{\gamma}_g \quad \text{Équation 2-3}$$

où  $\dot{\gamma}_g$  est le taux de cisaillement apparent dû uniquement aux effets visqueux, hors glissement.

La vitesse de glissement est le quart de la pente de la courbe  $\dot{\gamma}_{app}$  en fonction de  $1/R$  pour une valeur de  $\tau_p$  constante, Figure 2-16. Si toutefois la courbe de  $\dot{\gamma}_{app}$  en fonction de  $1/R$  n'est pas une droite, la méthode n'est alors pas applicable.

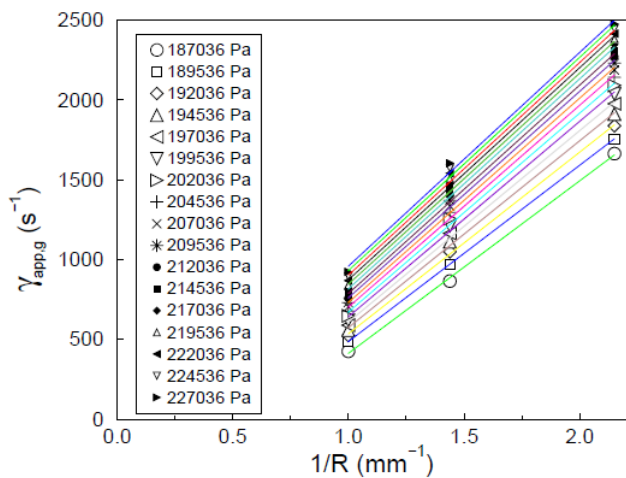


Figure 2-16 : Exemple de graphes de Mooney pour le PEHD à 193 °C [Robert, 2001].

Cette méthode n'est pas toujours efficace en utilisant des polyéthylènes linéaires. En effet, Geiger (1989), Mourniac (1991) et Durand (1993) trouvent en l'appliquant des valeurs de vitesse de glissement supérieures à la vitesse moyenne de l'écoulement ou des valeurs à l'origine négatives, ce qui est physiquement absurde.

### b) La méthode de Geiger

Afin de pallier les problèmes de la méthode de Mooney, Geiger (1989) suppose que la vitesse de glissement est fonction non seulement de la contrainte de cisaillement mais en plus de la géométrie, c'est-à-dire du rayon du capillaire. Il définit le taux de cisaillement apparent comme suit :

$$\dot{\gamma}_{app} = f(\tau_p) F(\tau_p, h), \quad \text{Equation 2-4}$$

où  $\tau_p$ ,  $\dot{\gamma}_{app} = \frac{v}{h} \exp \left( \frac{f(\tau_p)}{h(R)} \right)$  avec  $f$ ,  $h$  et  $g$  des fonctions à déterminer.

$$V_g(\tau_p, R) = \frac{R}{4} g(\tau_p) \left( \frac{f(\tau_p)}{h(R)} - 1 \right) \quad \text{Équation 2-5}$$

En traçant les graphes  $\ln(\dot{\gamma}_{app})$  en fonction de  $1/h(R)$  à  $\tau_p$  constante, il détermine la vitesse de glissement. Ceci n'est faisable que si les points sont alignés, ce n'est pas le cas pour les tracés de Robert (2001) et Durand (1993) qui travaillent avec un PEHD. Par contre cette méthode est validée par Karam (1995), travaillant sur des mélanges d'élastomères à base de SBR (Copolymère Styrène Butadiène) et d'EPDM (Terpolymère Ethylène Propylène Diène).

### c) La méthode de Weigreffe

Weigreffe considère comme Geiger que la vitesse de glissement dépend de la géométrie en proposant  $h(\dot{\gamma}) =$

$\frac{v}{\dot{\gamma}}$ .

$\dot{\gamma}_g(\tau_p, h) = \frac{v}{4h}$  est la vitesse de glissement proposée.

La vitesse de glissement est déterminée à partir des courbes à  $\tau_p$  constante de  $\dot{\gamma}_{app}$  en fonction de  $\frac{1}{h(\dot{\gamma})}$  ou  $\frac{1}{\dot{\gamma}^2}$ . Cette méthode permet d'avoir un meilleur alignement des courbes, mais comme pour la méthode de Mooney, des valeurs non physiques peuvent être retrouvées.

### d) La méthode de Mourniac

Mourniac (1991), ne réussissant pas à déterminer une vitesse de glissement pour des

élastomères à partir des méthodes précédentes, se base sur le principe de Mooney, où le débit est la somme d'un débit de cisaillement et d'un débit de glissement. Pour déterminer le débit de cisaillement, il utilise d'abord un viscosimètre à rotor biconique rainuré, ce qui permet

d'avoir la consistance  $\tau_{0,exp}$  et l'indice de pseudoplasticité  $m_{exp}$  du matériau en l'absence de

glissement. Ensuite, pour un écoulement dans une filière cylindrique avec glissement, il mesure les paramètres  $K$  et  $m$  de la loi de puissance  $\tau_p = K \dot{\gamma}_p^m$ .

Il écrit ensuite la vitesse de glissement comme suit :

$$V_g = R \frac{\tau_{0,exp}}{K} \left( \frac{1}{m_{exp}} - \frac{1}{m} \right) \quad \text{Équation 2-6}$$

Il trouve une vitesse de glissement qui reste inférieure à la vitesse moyenne pour différentes contraintes à la paroi. Une fois la valeur du glissement validée, Mourniac (1991) corrige le taux de cisaillement afin de déterminer le comportement réel du polymère pour l'écoulement dans des capillaires.

#### e) Calcul du glissement par référence à la zone I de la courbe d'écoulement

Cette méthode ne postule aucune loi de glissement, mais a été utilisée par Durand (1993) avec succès. Il s'agit uniquement de la comparaison entre deux courbes de contrainte réelle en fonction de la vitesse de cisaillement apparente : dans la zone I de la Figure 2-15 : Aspect des extrudats d'un polyéthylène linéaire par rapport à l'évolution de la courbe d'écoulement [Robert, 2001]. Figure 2-15, le contact est collant et dans la zone II, il y a un glissement à la paroi. A contrainte identique, l'écart entre les courbes des deux zones est équivalent au débit associé au glissement et qui vaut  $4V_g$

/

## 2.2.2 Mesures de rhéologie spécifiques à la microinjection

Pour atteindre des taux de cisaillement importants, des rhéomètres classiques ont été adaptés. A cet effet, l'utilisation de filières avec des micro-diamètres et l'augmentation des vitesses de pilotage des rhéomètres ont été nécessaires. L'écoulement dans des micro-canaux a également été étudié.

Les phénomènes associés au comportement de la matière soumise à de forts cisaillements, à savoir la dissipation de chaleur, la dépendance de la viscosité avec la pression, la compressibilité, etc, ont été ou pas pris en compte selon les études.

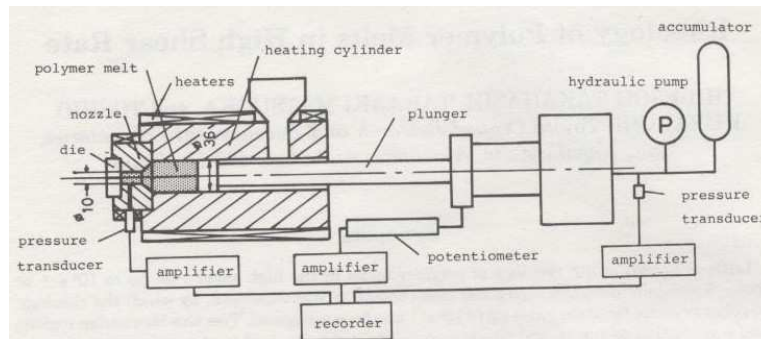
### 2.2.2.1 Techniques de mesures rhéologiques



***a) Rhéométrie capillaire à hauts taux de cisaillement***

Takahashi et al. (1985) utilisent un rhéomètre capillaire avec une unité d'injection hydraulique spécialement conçue pour l'application de hauts taux de cisaillement à des

polymères fondus, Figure 2-17. Les capillaires utilisés ont des diamètres compris entre 0,4 et 1 mm et les taux de cisaillement atteints vont jusqu'à  $10^8 \text{ s}^{-1}$ . Pour les bas taux de cisaillement, inférieurs à  $10^4 \text{ s}^{-1}$  un rhéomètre conventionnel a été utilisé.



**Figure 2-17 : Rhéomètre capillaire monté sur une unité d'injection hydraulique [Takahashi et al., 1985].**

L'analyse est isotherme, incompressible et la viscosité du polymère est non-piezodépendante. Les résultats sont présentés en termes de viscosité apparente en fonction du taux de cisaillement apparent.

Sept polymères ont été étudiés, à savoir un polyéthylène haute densité classique (PEHD), un polyéthylène haute densité de haute masse moléculaire (UHMWPE), un polypropylène (PP), un polystyrène (PS), un polystyrène acrylonitrile (SAN), un polycarbonate (PC) et un polyamide (PA-66).

Les résultats obtenus pour un PEHD montrent une région pseudoplastique pour les taux de cisaillement en dessous de  $3 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$ , suivie d'un palier Newtonien, suivi d'une nouvelle décroissance, Figure 2-18. La viscosité dans la 1<sup>ère</sup> région non newtonienne (non représentée sur le graphe), dépend de la densité des enchevêtrements. Dans la 2<sup>ème</sup> région newtonienne, la viscosité est constante du fait que tous les enchevêtrements disparaissent et que la viscosité ne dépend plus que du frottement des molécules orientées. Dans la 2<sup>ème</sup> région non newtonienne, la viscosité décroît en raison de la scission des chaînes, c'est-à-dire, de la dégradation du polymère. L'UHMWPE a le même comportement que le PEHD avec la présence d'un second plateau et d'une seconde région non newtonienne. La courbe d'écoulement du PP présente un second plateau newtonien mais pas de 2<sup>ème</sup> région non newtonienne.

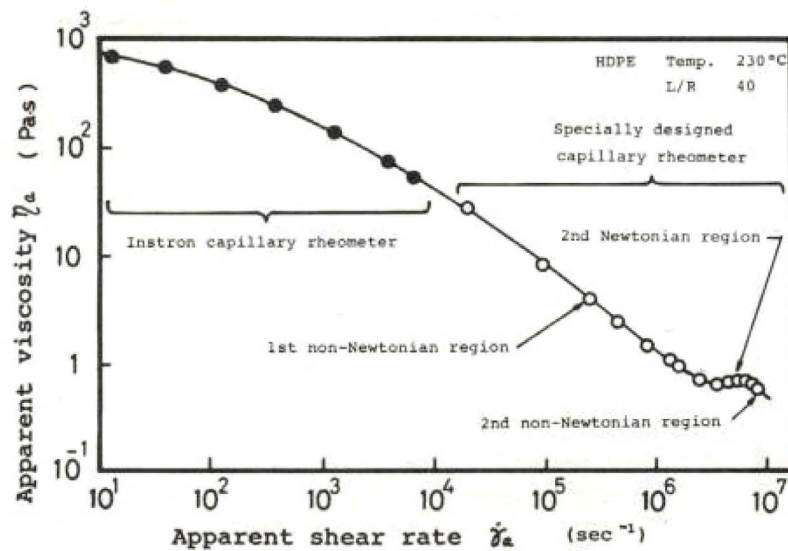


Figure 2-18 : Courbe de la viscosité apparente en fonction du taux de cisaillement apparent du PEHD, capillaire de diamètre 0,5 mm et de longueur 10 mm [Takahashi et al., 1985]

La courbe de viscosité apparente en fonction du taux de cisaillement apparent pour le PS présente une zone de transition à haut taux de cisaillement à la place de la seconde région newtonienne. Cette transition se traduit par une discontinuité autour de  $5 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$ , Figure 2-19. Ce phénomène peut être dû à une très forte orientation, une scission des chaînes et une restriction de leur mouvement à très forts taux de cisaillement.

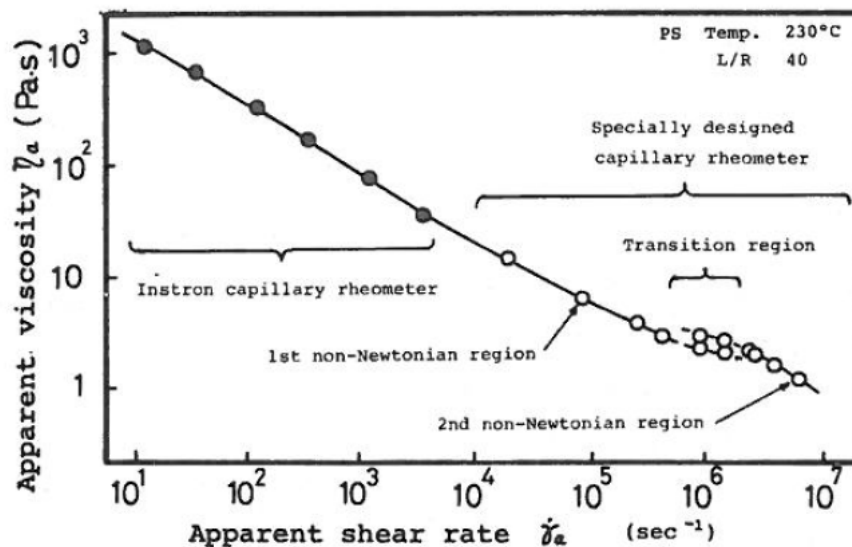


Figure 2-19 : Courbe de la viscosité apparente en fonction du taux de cisaillement apparent du PS [Takahashi et al., 1985].

Le SAN et le PA 66 présentent un comportement intermédiaire entre ceux du PEHD et du PS. La Figure 2-20 montre les résultats pour le SAN. La viscosité décroît jusqu'à un taux de cisaillement de  $3 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$  où elle devient constante, puis présente un pic à un taux de cisaillement de  $5 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$  avant de décroître à nouveau. La 1<sup>ère</sup> région non-newtonienne est attribuée à la diminution de la densité d'enchevêtrement. Lorsque le taux de cisaillement augmente, les macromolécules sont étirées sur toute leurs longueurs, le taux de désenchevêtrement est alors négligeable, d'où la présence du 2<sup>nd</sup> plateau newtonien. La brusque augmentation de la viscosité observée à la fin de ce plateau est expliquée par un nouvel enchevêtrement des macromolécules déjà étirées. La 2<sup>ème</sup> région non-newtonienne est reliée à un nouveau désenchevêtrement des macromolécules.

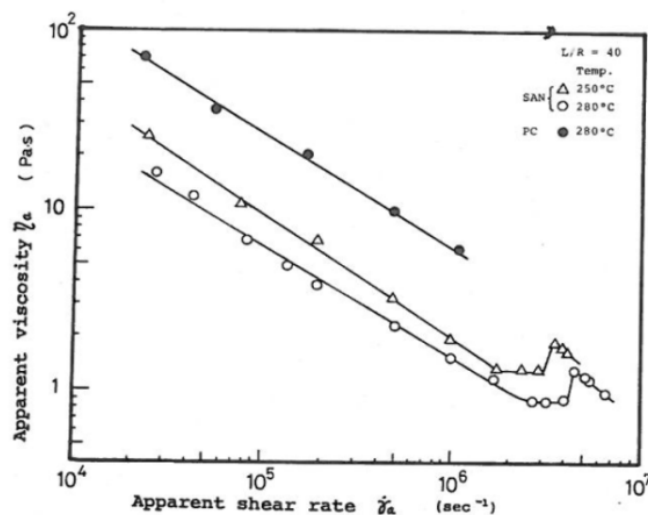
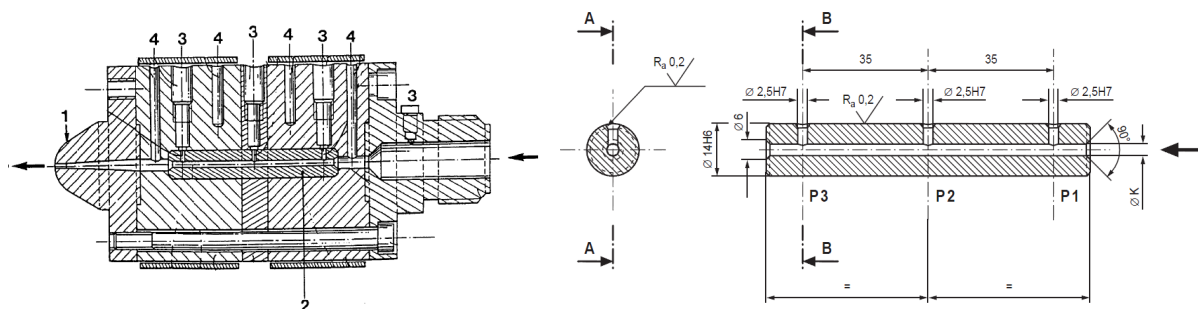


Figure 2-20 : Courbes de la viscosité apparente en fonction du taux de cisaillement apparent du SAN et du PC [Takahashi et al., 1989].

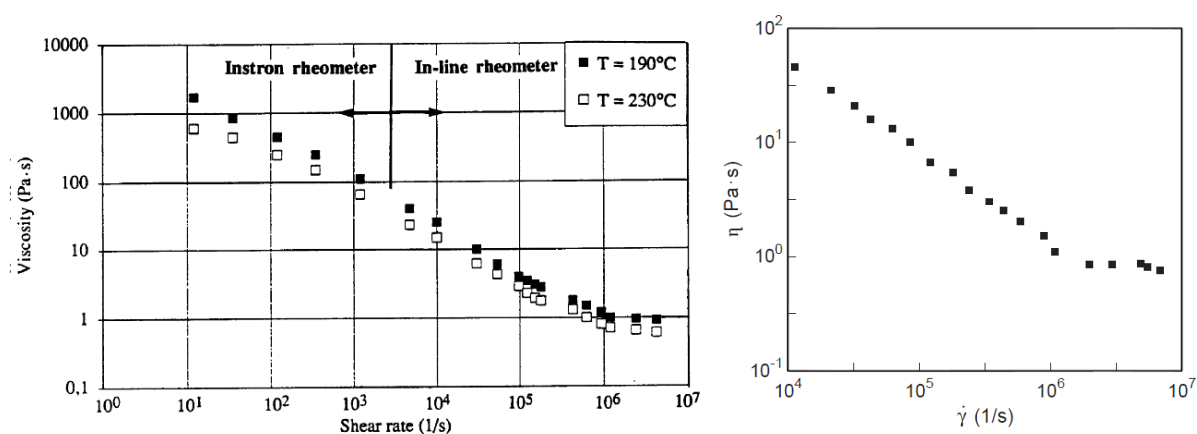
Le comportement de l'écoulement à haut taux de cisaillement dépend de la forte orientation et de la scission des molécules des polymères.

Haddout et Villoutreix (2000) ont mené une étude similaire. Un capillaire de 2 à 5 mm de diamètre équipé de 3 capteurs de pression a été monté en tête d'une presse à injecter, Figure 2-21.



**Figure 2-21 : Schéma du rhéomètre en ligne 1 : buse, 2 : filière, 3 : thermocouple, 4 : capteur de pression (à gauche) et schéma détaillé de la filière (à droite) [Haddout et Villoutreix, 2000].**

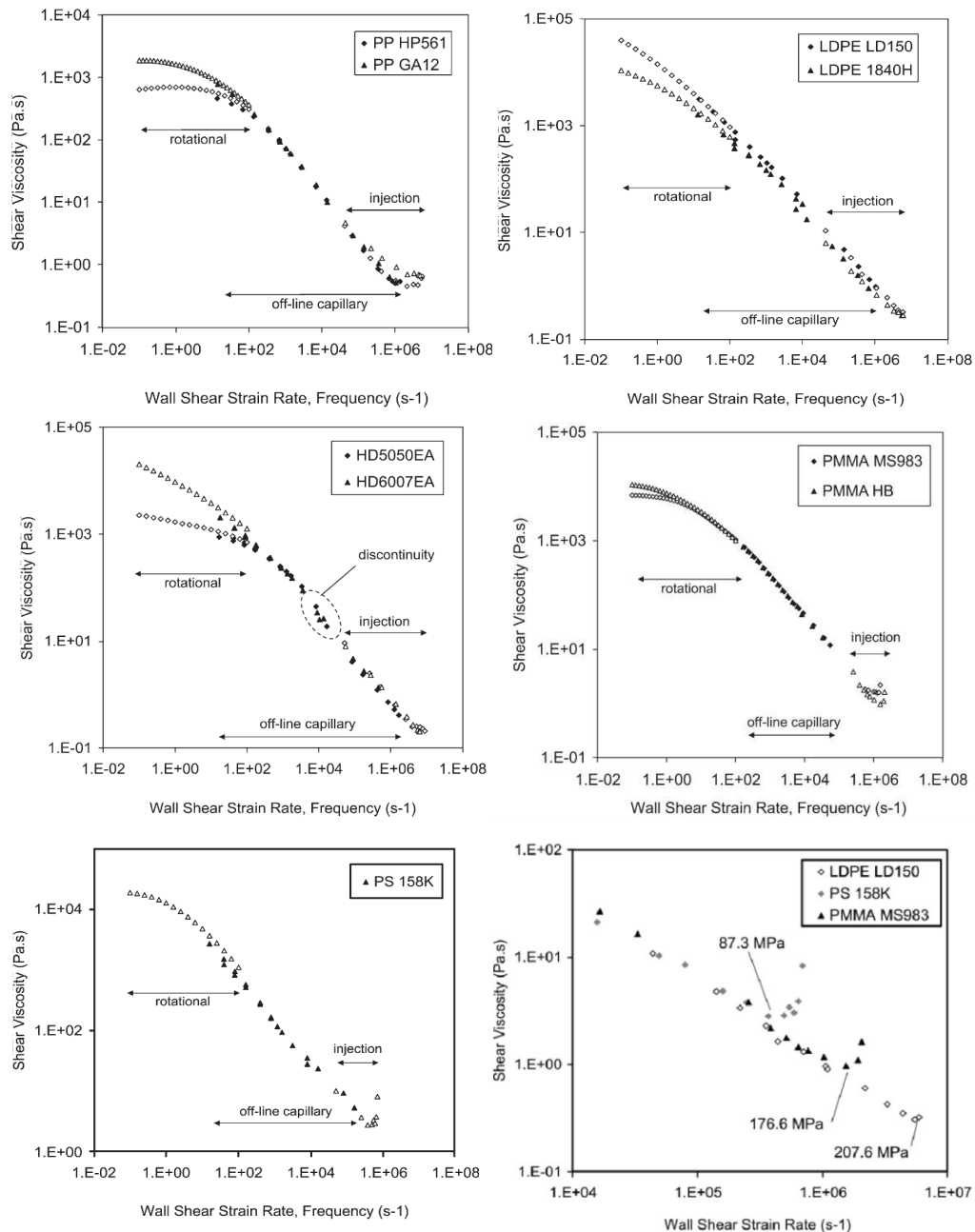
L'analyse est isotherme incompressible non piezodépendante et avec un contact collant. Pour un PP, on trouve un plateau newtonien au-delà de  $10^6 \text{ s}^{-1}$ . Pour un PEHD, ce deuxième plateau est suivi par une décroissance de la viscosité comme pour Takahashi et al (1985), Figure 2-22.



**Figure 2-22 : Courbe de viscosité en fonction du taux de cisaillement pour un PP (à gauche) et un PEHD (à droite) [Haddout et Villoutreix, 2000].**

Kelly et al. (2009) ont utilisé un rhéomètre rotationnel plan-plan, un rhéomètre capillaire avec des capillaires de diamètres 0,25 mm, 1 mm et 2 mm et une presse d'injection modifiée avec, à la place de la buse, un capillaire instrumenté de diamètre 0,5 mm.

Ils ont utilisé différents grades de polymères commerciaux. Il s'agit de PP, de PEHD, de PEBD, de PS et de PMMA. Les résultats sont présentés sous forme de courbes de viscosité en fonction du taux de cisaillement obtenues à l'aide des trois techniques de mesure rhéologique et avec des méthodes de dépouillement reposant sur les hypothèses classiques (isotherme, contact collant, ...), Figure 2-23.



**Figure 2-23 : Courbe de viscosité en fonction du taux de cisaillement pour deux grades de PP, deux grades de PEBD, deux grades de PEHD, deux grades de PMMA et un PS (respectivement de gauche à droite et du haut en bas) [Kelly et al. 2009].**

Le PMMA tout comme le PS présentent aux forts taux de cisaillement, autour de  $5.10^5 \text{ s}^{-1}$ , une inflexion vers une augmentation de la viscosité avec l'augmentation du cisaillement. Le fluide a alors un caractère rhéoépaississant.

Les résultats du PEBD et du PEHD montrent l'absence de ce 2<sup>nd</sup> plateau. A la place du plateau, nous avons une légère variation de la pente de pseudoplasticité à très haut taux de

cisaillement. La discontinuité dans la courbe de viscosité du PEHD est due aux instabilités de l'écoulement de celui-ci autour de  $10^4 \text{ s}^{-1}$ .

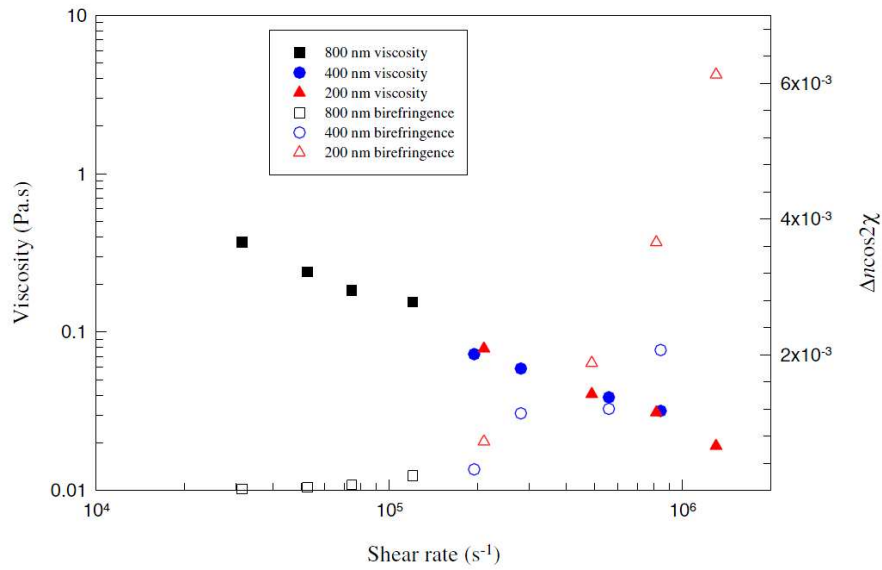
Les résultats du PP sont globalement en concordance avec les résultats de Haddout et Villoutreix (2000), Figure 2-22, avec l'apparition d'un 2<sup>nd</sup> plateau newtonien à hauts taux de cisaillement, autour de  $10^6 \text{ s}^{-1}$ . Une cristallisation forcée à haute pression serait à l'origine de ce phénomène (Benhadou, Haddout et Villoutreix, 2007)

L'interprétation de ces résultats peut être biaisée par le fait de négliger la dissipation de chaleur, la compression et les effets de la pression sur la viscosité. En effet, les pressions atteintes en moins de 1 s vont jusqu'à 260 MPa. Selon les auteurs, ce mécanisme affecte plus sensiblement les polymères amorphes (PS et PMMA) que les semi-cristallins (PE).

### ***b) Rhéologie des écoulements dans des micro-canaux***

Sha et al. (2007) ainsi que d'autres auteurs suggèrent que le comportement rhéologique des polymères fondus injectés dans un moule comportant des micro-détails, ou dans une cavité très fine, est spécifique.

Mriziq et al.(2007) ont déterminé la viscosité, la contrainte de cisaillement et la biréfringence à hauts taux de cisaillement d'un film lubrifiant en perfluoropolyéther (PFPE) à l'aide d'un rhéomètre optique rotationnel « transparent ». Des mesures ont été réalisées à différentes vitesses de rotation des disques du rhéomètre et l'épaisseur du film a été relevée pour chaque essai. La dépendance de la biréfringence  $\Delta n \cdot \cos \chi$ , selon l'angle d'orientation  $\chi$ , ainsi que celle de la viscosité avec le taux de cisaillement ont été mesurées simultanément, Figure 2-24. Les différentes courbes correspondent aux différentes épaisseurs de film allant de 200 nm à 800 nm.

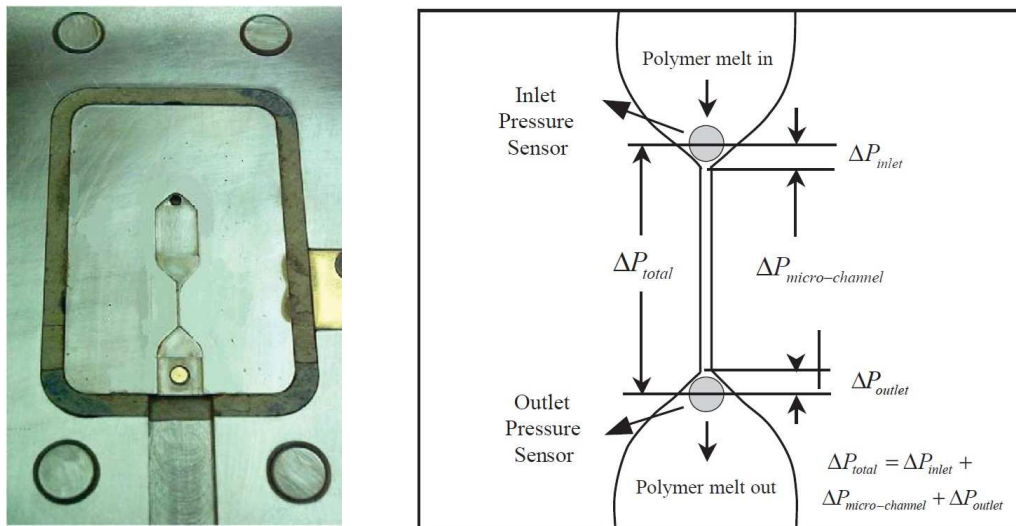


**Figure 2-24 : Courbes de viscosité et de biréfringence en fonction du taux de cisaillement de films de PFPE [Mriziq et al., 2007].**

A faible taux de cisaillement, inférieurs à  $4 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$ , la biréfringence est quasi nulle, ce qui traduit un faible alignement des chaînes. Au-delà d'un taux de cisaillement de  $10^5 \text{ s}^{-1}$  le film devient anisotrope. Une corrélation est alors observée entre le caractère rhéofluidifiant de la viscosité et l'alignement des chaînes mesuré par la biréfringence.

Chen et al. (2005) ont étudié la rhéologie dans des canaux de section carrée de 500, 300 et 200  $\mu\text{m}$  de côté. Ces canaux sont implantés dans un moule réglé à la température d'injection. La pression est mesurée en aval et en amont Figure 2-25. L'analyse est isotherme, incompressible, non piezodépendante avec un contact collant. Les taux de cisaillement atteints sont inférieurs à  $10^4 \text{ s}^{-1}$ . Les résultats montrent, qu'à taux de cisaillement équivalents, la viscosité d'un ABS décroît lorsque la section du canal décroît. De plus, en comparant ces résultats avec ceux donnés par un rhéomètre capillaire traditionnel (diamètre non spécifié), les auteurs trouvent que la viscosité dans les micro-canaux est de 32 à 74 % inférieure.



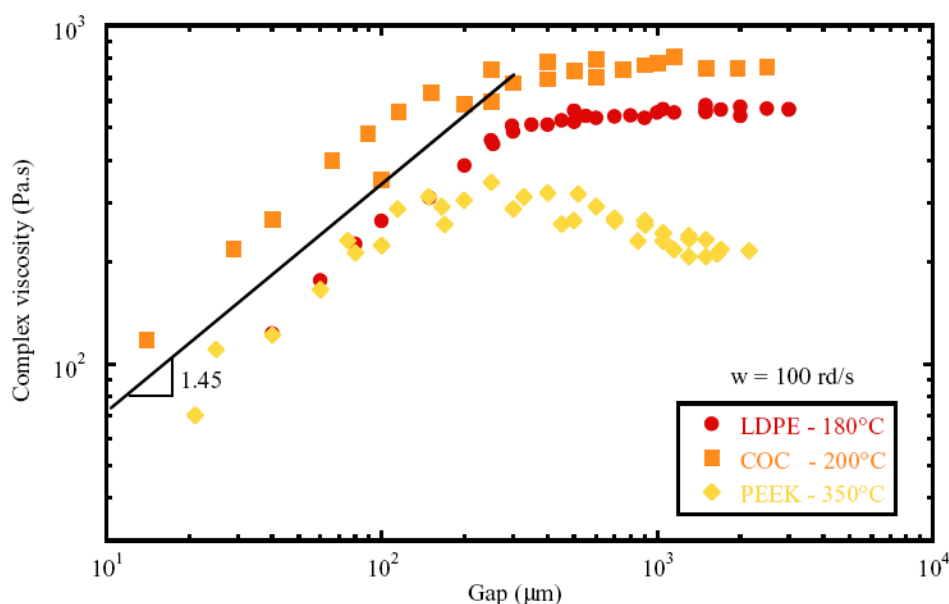


**Figure 2-25: Photographie et schéma de principe du moule avec le micro-canal [Chen et al. 2005].**

Nigen-Chaidron et Chaidron (2005) ont utilisé un rhéomètre dynamique plan-plan contrôlé en déformation avec des entrefers compris entre 14  $\mu\text{m}$  et 2 mm. Ils ont étudié trois polymères de structures différentes. Le premier est un amorphe, le cyclo oléfine copolymer (COC), et les deux autres sont des semi-cristallins, le polyéthylène basse densité (PEBD), très ramifié avec de longues chaînes et le polyétheréthercétone (PEEK).

La Figure 2-26 présente un diagramme log-log de la viscosité complexe en fonction de l'entrefers. Pour le PEBD et le COC et pour des entrefers compris entre 300  $\mu\text{m}$  et 2000  $\mu\text{m}$ , le module de la viscosité complexe est indépendant de l'entrefers, tandis qu'en dessous de 300  $\mu\text{m}$ , le module décroît d'un facteur 5 à 10 lorsque l'entrefers décroît. Pour les entrefers les plus larges, la courbe de viscosité pour les deux polymères présente un plateau et pour les entrefers les plus étroits la courbe présente une pente approximative de +1,45. Pour le PEEK, la viscosité apparente mesurée est constante pour des entrefers allant de 2000 à 1500  $\mu\text{m}$ . Sa valeur croît de 50% en allant de 1500 à 150  $\mu\text{m}$ , puis décroît d'un facteur 5 pour les entrefers allant jusqu'à 14  $\mu\text{m}$ .

Les effets de glissement étant négligés, les auteurs expliquent l'influence de l'entrefers sur la viscosité apparente par un réarrangement forcé des chaînes du polymère dans un espace réduit. Ceci dépend également de la structure moléculaire du polymère.



**Figure 2-26 : Effet de l'entrefer sur la viscosité complexe de trois polymères [Nigen-Chaidron et Chaidron, 2005].**

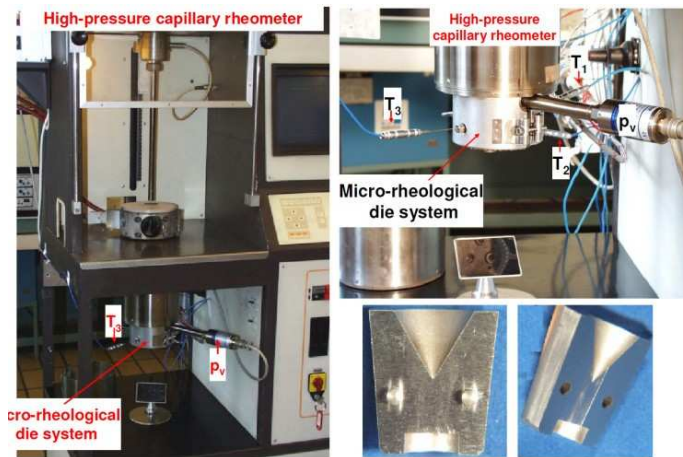
Henson et Mackay (1995) ont mesuré la rhéologie de polystyrènes en géométrie plan-plan dynamique, pour des entrefers compris entre  $5 \mu\text{m}$  et  $1 \text{ mm}$ . La vitesse de glissement est quantifiée par la longueur de glissement (égale à la vitesse de glissement divisée par la vitesse de cisaillement) et le coefficient de frottement (égal à la vitesse de glissement divisée par la contrainte de cisaillement). Le glissement à la paroi a pour effet de réduire la valeur de la viscosité apparente quand l'entrefer diminue.

Pour de faibles pulsations, il a été trouvé que le PS présente un phénomène de glissement à la paroi. L'étendu du glissement à la paroi dépend de la masse moléculaire, de la température et du taux de cisaillement (Mackay 1995).

## 2.2.2.2 Viscosité dans les conditions extrêmes

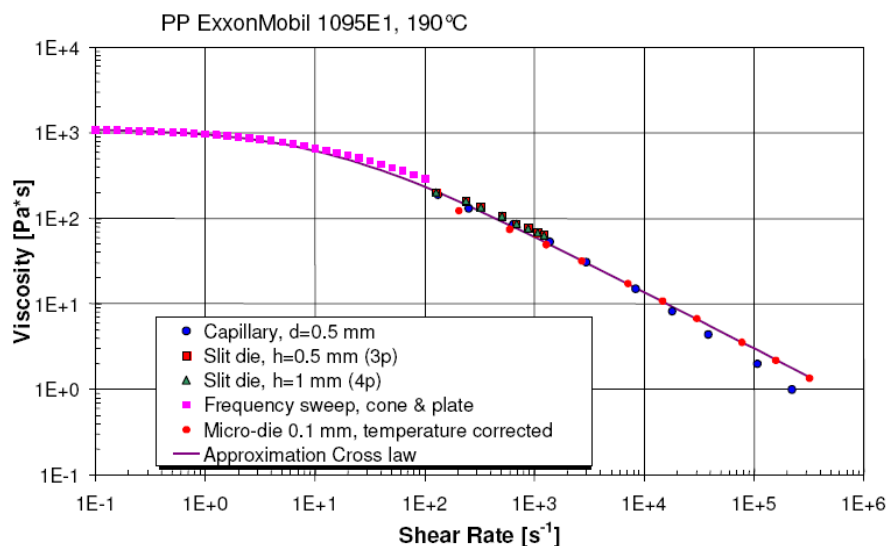
### a) Thermo dépendance de la viscosité

Friesenbichler et al. (2003) ont utilisé un rhéomètre capillaire haute pression, HPCR Rheograph 2002 fabriqué par Göttfert, Figure 2-27. Ils l'ont équipé de micro-capillaire de diamètre  $0,5 \text{ mm}$  et d'une filière plate avec un entrefer de  $0,1 \text{ mm}$  et de  $0,15 \text{ mm}$  pour étudier la rhéologie des polymères fondus à haut taux de cisaillement.



**Figure 2-27 : Rhéomètre capillaire à haute pression (à gauche et en haut à droite) avec une micro-filière (en bas à droite), [Friesenbichler et al.].**

L'écoulement ne pouvant être considéré comme isotherme, les auteurs tiennent compte d'une évolution de la température moyenne calculée analytiquement à l'aide du nombre de Cameron  $Ca$  (Agassant et al., 1996). La piezodépendance de la viscosité a été négligée. La technique de dépouillement mise au point a été appliquée à un polypropylène (PP). Les auteurs ont obtenu des valeurs de viscosité jusqu'à des taux de cisaillement de l'ordre de  $10^6 \text{ s}^{-1}$ . Le plateau newtonien aux faibles valeurs se poursuit par une évolution de type loi puissance. Aucun second plateau newtonien n'est décelé, Figure 2-28.



**Figure 2-28 : Viscosité d'un PP mesuré à l'aide de rhéomètres standards et de la micro-filière plate rhéologique en appliquant la correction de température [Friesenbichler et al., 2003].**

### ***b) Piezodépendance de la viscosité***

Il est bien connu que la viscosité de la plupart des polymères fondus augmente de façon exponentielle avec la pression. Cette dépendance a un impact direct sur la mise en œuvre des polymères par injection où les polymères sont soumis à de très hautes pressions.

Une première théorie prédictive de la viscosité, fondée sur la mécanique statique des liquides est celle d'Eyring (Glasstone, 1941). Lors de l'application de la contrainte  $\tau$ , un écoulement du liquide en cisaillement simple à la vitesse de déformation  $\dot{\gamma}$  est engendré. La viscosité est alors définie par :

$$\eta = \frac{\tau}{\dot{\gamma}} = \frac{h}{v} e^{G/k_B T} \quad \text{Équation 2-7}$$

où  $h$  est la constante de Planck,  $k_B$  est la constante de Boltzmann,  $G$  l'enthalpie libre d'activation,  $T$  la température et  $v$  le volume d'une molécule.

En considérant la variation de la viscosité avec la pression, le mécanisme moléculaire de la viscosité illustré par Eyring nécessite la formation d'un trou de volume  $\Delta v$  (Agassant et al., 1996). L'accroissement de ce volume fait que l'enthalpie d'activation dépend de la pression, elle s'écrit comme suit :

$$H(p) = H + \Delta v \cdot p \quad \text{Équation 2-8}$$

et comme l'enthalpie libre d'activation est :

$$G = H(p) - TS \quad \text{Équation 2-9}$$

L'expression de la viscosité devient :

$$\eta = \frac{h}{v} \cdot \exp\left(\frac{-S}{k}\right) \cdot \exp\left(\frac{H}{kT}\right) \cdot \exp\left(\frac{\Delta v \cdot p}{kT}\right) \quad \text{Équation 2-10}$$

La dépendance de la viscosité par rapport à la pression est communément exprimée par le coefficient de piezodépendance  $\chi$  (Barus, 1891) :

$$\chi = \frac{\Delta v}{kT} = \frac{d \ln \eta}{dp} \quad \text{Équation 2-11}$$

L'étude rhéologique des polymères fondus via l'utilisation d'un rhéomètre capillaire en présence de pressions élevées a permis l'obtention d'informations sur la dépendance des

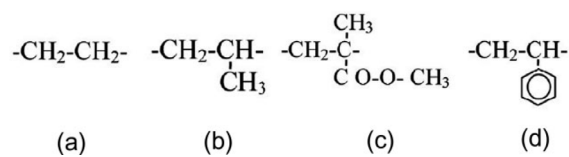
écoulements des polymères en cisaillement et en élongation avec la pression (Binding et Couch, 1998). Dans une étude ultérieure, la dépendance de la viscosité par rapport à la température a également été prise en compte (Couch et al., 2000). De ce fait, le facteur de glissement reliant la viscosité, à une température  $T$  et à une pression  $p$ , à la viscosité à une température de référence  $T_{ref}$  et respectant les lois de Barus et d'Arrhenius est donné par :

$$a_{TP} = \exp\left(\frac{E}{R} \cdot \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_{ref}}\right) + \chi p\right) \quad \text{Équation 2-12}$$

Ainsi, les dépendances à la température et à la pression pour un polymère donné sont déterminées les valeurs de  $E/R$  et de  $\chi$  pour différents polymères. Ceci dit, ces valeurs ne sont pas les mêmes pour des écoulements en élongation et des écoulements en cisaillement. Par contre, pour Couch et al. (2000), le coefficient  $\chi$  ne dépend pas de la température de mesure.

L'ordre décroissant des dépendances de certains polymères avec la pression est présenté comme suit par Couch et al., (2000): PS > PMMA > PP > LDPE > PEHD.

En effet, il a été démontré que cette dépendance est déterminée par la structure moléculaire des polymères. Dans ce sens, le PEHD, qui a la structure linéaire la plus simple et donc des chaînes très flexibles, est le moins dépendant de la température et de la pression. Tandis que le PMMA et le PS, présentant de plus grands groupements latéraux liés à la chaîne de carbone, présentent une forte dépendance à la température et à la pression, Figure 2-29.



**Figure 2-29 : Structure des polymères, (a) : PEBD et PEHD, (b) : PP, (c) : PMMA, (d) : PS**

Un ordre similaire de classement des polymères a été proposé par Sedlacek et al. (2004), mais ils montrent qu'il existe une dépendance d'une part entre le coefficient de sensibilité thermique, défini précédemment par  $E/R$  (Équation 2-12), et la pression et d'autre part entre le coefficient de piezodépendance  $\chi$  et la température. Les auteurs trouvent que les valeurs de ces deux coefficients sont classées par ordre décroissant comme suit : PMMA > PS > PC > PP > LDPE > LLDPE > PEHD.

Ces mêmes résultats sont retrouvés dans des essais de mesure de la dépendance de la viscosité par rapport à la pression en utilisant un rhéomètre capillaire (un Göttfert 2002 classique) équipé d'une chambre de pression placée en dessous du capillaire, Figure 2-30 (Cardinaels, 2007). Les auteurs en déduisent des courbes de viscosité pour un PMMA, un PEBD et un PαMSAN. Ils définissent un coefficient de piezodépendance, à température et à taux de cisaillement donnés.

$$\alpha_p = \frac{d \ln \eta}{d \ln p} \quad \text{Équation 2-13}$$

Ils définissent également, un coefficient de piezodépendance à température et à contrainte de cisaillement données.

$$\alpha_\tau = \frac{d \ln \eta}{d \ln \tau} \quad \text{Équation 2-14}$$

Les évolutions du coefficient de piezodépendance sont présentées par la Figure 2-31. Les auteurs observent un effet moins important de la contrainte de cisaillement.

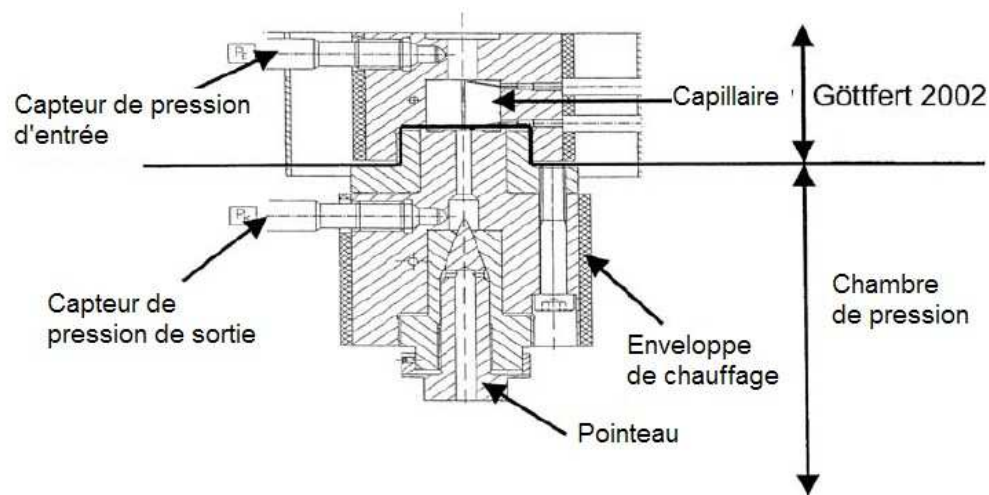
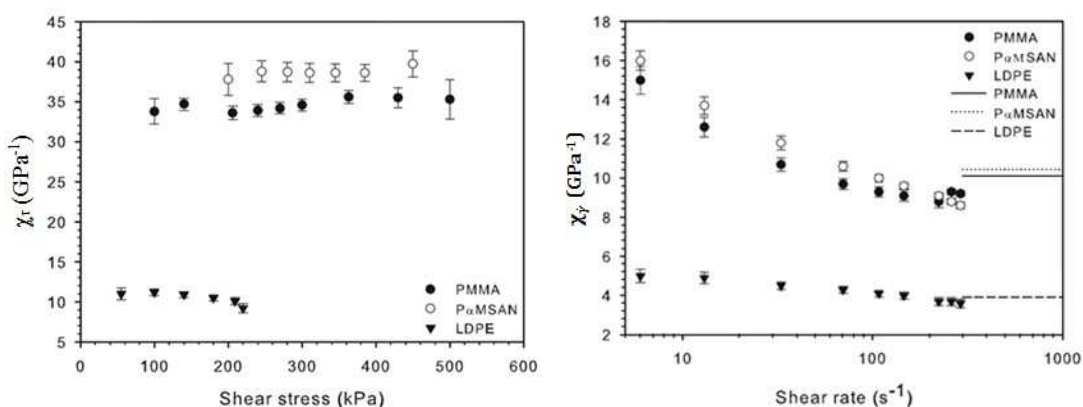


Figure 2-30 : Schéma de la chambre de pression attaché par-dessous le capillaire [Cardinaels,2007].



**Figure 2-31 : Evolution des coefficient de piezodépendance en fonction de la contrainte de cisaillement (à gauche) et du taux de cisaillement (à droite), à T=210 °C [Cardinaels,2007].**

Le même protocole de mesure est utilisé pour l'étude de la piezodépendance de la viscosité de PC, de PS, de PP, de PEHD et d'ABS (Acrylonitrile butadiène styrène) par Aho et Syrjälä (2010). Le coefficient de piezodépendance est déterminé pour ces différents polymères, Tableau 2-1

	PC	PS	PP	PEBD	ABS
$\chi$ (GPa <sup>-1</sup> )	26,6	35,5	20,5	17,6	33,7

**Tableau 2-1 : Coefficient de piezodépendance de certains polymères [Aho et Syrjälä, 2010].**

Comme pour les études précédentes, les amorphes (PS, ABS et PC), avec les structures moléculaires les plus complexes, sont plus piezodépendants que les semi-cristallins (PP et PEBD).

### ***c) Dépendance de la viscosité avec la dissipation de chaleur, la pression et la compressibilité***

Hay et al. (1999) et Laun (2003) ont tenu compte dans des écoulements de type poiseuille plan pour l'un et rhéométrie capillaire (poiseuille tube) pour l'autre de l'effet combiné de la dépendance de la viscosité par rapport à la pression et à la température moyenne. Ils considèrent aussi le matériau comme compressible.

Dans un article ultérieur (Laun, 2004), Laun considère en plus la possibilité d'un glissement à la paroi. Les résultats concernent principalement la méthode de dépouillement, et l'influence

de la piezodépendance. Pour des fluides compressibles, la variation de la densité réduit l'effet de la température et du coefficient de piezodépendance.

Hay trouve que la piezodépendance et la thermodépendance ont un effet sur les profils des courbes de pression le long du capillaire.

## 2.2.3 Modélisation de la rhéologie à haut taux de cisaillement

### 2.2.3.1 Thermo et piezo dépendance de la viscosité

Hay (1999) propose un modèle d'écoulement entre plaques parallèles avec un entrefer  $2H$ , tenant compte de la dépendance de la viscosité avec la dissipation de chaleur, la pression et la compressibilité.

L'équation de Poiseuille est basée sur l'hypothèse cinématique simple  $(u(y), 0, 0)$ . En toute rigueur, l'hypothèse cinématique doit être  $(u(x,y), v(x,y), 0)$ . Mais il est possible d'appliquer les approximations de la lubrification hydrodynamique, et donc de se ramener localement à un écoulement entre plaques parallèles, et l'équation de Poiseuille pour un fluide en loi puissance s'écrit :

$$\frac{d\phi}{dx} = -K \frac{\phi^{m+1}}{m} \frac{V_{moy}^m}{H^{2+m/m}} \quad \text{Équation 2-15}$$

où  $K$  est la consistance,  $m$  le coefficient de pseudoplasticité et  $V_{moy}$  est la vitesse moyenne d'écoulement.

Hay (2000) ajoute ensuite :

$$Q = \frac{\dot{m}}{\rho} \quad \text{Équation 2-16}$$

où  $\dot{m}$  est le débit massique. Soit :

$$V_{moy} = \frac{Q}{HW} = \frac{\dot{m}}{H\phi\rho} \quad \text{Équation 2-17}$$

En introduisant  $V_{moy}$  dans l'équation précédente, le calcul devient compressible :

$$\frac{d\phi}{dx} = -K \frac{\phi^{m+1}}{m} \frac{\dot{m}^m}{W^{2+m/m} \rho^m(p(x), T(x))} \quad \text{Équation 2-18}$$

Hay (2000) considère dans cette équation que la masse volumique et la consistance dépendent



de la température moyenne  $\bar{T}$  et de la pression,  $\rho(p(x), \bar{T}(x))$ ,  $K(p(x), \bar{T}(x))$ , et qu'il y a un échange thermique avec la paroi via une puissance échangée par unité d'aire  $\Lambda$ .

Ceci permet de coupler mécanique et thermique en température moyenne, viscosité thermodépendante (en  $K_0 e^{-\alpha_\eta(T-T_i)}$ ), viscosité piezodépendante, loi puissance, compressible.

### 2.2.3.2 Glissement à la paroi

Rosenbaum et Hatzikiriakos (1997) prennent en compte l'effet du glissement à la paroi dans un écoulement capillaire. Ils tiennent compte de la conduction, la convection et la dissipation de la chaleur dans le capillaire pour un écoulement avec glissement. Ils déterminent par la suite une vitesse de glissement pour les hauts taux de cisaillement qui est corrigée par les effets de la thermodépendance de la viscosité.

Pour leur modèle mathématique, le calcul est compressible, avec une densité fonction de la température et de la pression, et une viscosité qui dépend de la pression et de la température.

La loi puissance utilisée conduit à la contrainte de cisaillement :

$$\tau_{rz} = K e^{\chi p} \alpha_\eta T \left( \frac{\partial v_z}{\partial r} \right)^{m-1} \quad \text{Équation 2-19}$$

où  $K$  est la consistance,  $m$  est l'indice de pseudoplasticité ;  $\chi$  et  $\alpha_\eta$  sont les coefficients de piezodépendance et de thermodépendance de la viscosité.

La vitesse de glissement est exprimée dans un premier temps sous forme de loi de puissance simple, ou loi de Norton, de paramètres  $\beta$  et  $b$  et avec un seuil  $\tau$ .

$$V_g = \frac{\beta}{\left( \frac{\tau_p + \tau}{\tau_p} \right)^{1/b}} \tau_p^b \quad \text{Équation 2-20}$$

où  $\tau_p$  est la contrainte de cisaillement à la paroi. Le rapport  $1/1 + \tau/\tau_p^{10}$  permet la prise en compte de la vitesse de glissement à partir d'un seuil de contrainte de cisaillement donné (en effet pour  $\tau_p < \tau$ ,  $V_g=0$  et pour  $\tau_p > \tau$ , ledit rapport est égal à 1). Cette loi est simplifiée

par

Ansari et al. (2012) qui, pour un PEHD, considèrent que le fait que les courbes d'écoulement ne soient pas discontinues permet de déterminer une vitesse de glissement sur toute la zone de vitesses de déformation. La vitesse de glissement est thermodépendante (avec un facteur de glissement en température  $\alpha_T$  déterminé par la loi d'Arrhenius).

$$\alpha_T V_g = \frac{b}{\tau_p}$$

Une loi de glissement thermodépendante et piezodépendante, proposée par Hatzikiriakos et Dealy (2009), a été utilisée dans un deuxième temps. Les paramètres de cette loi ont été lissés à partir de superposition avec des résultats expérimentaux.

$$V_g = \frac{a_0 (\dot{\gamma})}{1 + a_1 \dot{\gamma}} \exp\left(-\frac{c_2}{RT}\right) \exp\left(-\frac{b}{I^{1/4}}\right) \quad \text{Équation 2-21}$$

où  $a_0, a_1, a_2, b$  sont des coefficients et  $\frac{a_1(\dot{\gamma} - T_0)}{2 + (T - T_0)}$  est la dépendance en

fonction de la température de la loi WLF.  $E$  est l'énergie d'activation et  $I$  est la polydispersité du polymère.

L'exploitation du modèle mathématique est faite en traçant des courbes de la contrainte de cisaillement à la paroi en fonction du taux de cisaillement apparent pour trois cas de figure :

- Calcul sans dépendance de la viscosité avec  $p$  ou  $T$ , avec glissement.
- Calcul avec dépendance de la viscosité, sans glissement.
- Calcul avec dépendances de la viscosité et du glissement.

L'effet du glissement est plus important pour les faibles diamètres de filière. L'effet des thermo et piezodépendance de la viscosité apparaissent pour les taux de cisaillement élevés (au-dessus de  $3 \cdot 10^2 \text{ s}^{-1}$ ) et sont plus importants pour les grands diamètres où la conduction est moins efficace.

L'effet combiné des deux phénomènes donne des déviations des courbes avec une prédominance de l'effet du glissement à faible taux de cisaillement et un effet des dépendances de la viscosité dominant à fort taux de cisaillement surtout pour les forts diamètres. Il faut néanmoins prendre en compte le fait que les dépendances de la viscosité sont des paramètres qui varient selon les propriétés physiques de chaque matériau.

## 2.3 Synthèse

Dans ce chapitre, nous avons présenté dans un premier temps l'état de l'art du procédé de microinjection des polymères. Nous avons passé en revue les types de produits microinjectés ainsi que leurs applications. Nous nous sommes intéressés aux matériaux utilisés pour répondre à des besoins techniques définis. Nous avons examiné les challenges technologiques, à savoir l'utilisation de presses spécifiques ou adaptées que nécessitent ces transformations, et les challenges scientifiques qui se traduisent par les conditions extrêmes rencontrées, comme les hautes températures du moule et du fluide, les fortes pressions, les grandes vitesses, la sensibilité à la rugosité du moule, ...

Nous avons étudié des travaux réalisés pour confronter des essais expérimentaux de microinjection avec des simulations numériques. Deux types de logiciels ont été utilisés, avec un solveur 2,5D de type Hele-Shaw et avec un solveur 3D. Les résultats des outils de simulations disponibles dans le commerce (Moldflow, C-Mold, Moldex, ...) concordent imparfaitement avec la réalité. En effet, des phénomènes physiques, supposés négligeables dans le cas de l'injection classique sont à prendre en compte pour ce qui concerne la microinjection, comme le glissement à la paroi, ou la dépendance de la viscosité avec la taille de l'entrefer d'écoulement. Certains logiciels ont été adaptés pour identifier la sensibilité du calcul aux différents paramètres.

Dans un second temps, nous nous sommes intéressés à la rhéologie en conditions extrêmes qui est l'un des enjeux scientifiques de la microinjection. Cela signifie d'une part de forts taux de cisaillements. Les auteurs ont pour la plupart utilisé des géométries conventionnelles (capillaire ou filière plate) à fort débit, et dépouillé en négligeant échauffement, compressibilité, glissement à la paroi. Les auteurs trouvent alors selon les cas un deuxième palier newtonien à fort taux de cisaillement, et même une deuxième région pseudoplastique. Une étude (Friesenbichler et al., 2003) corrige le dépouillement en tenant compte de l'échauffement, et la courbe de viscosité obtenue est classique. Nous pouvons donc avoir des doutes sur l'existence d'un comportement spécial à fort taux de cisaillement. Condition extrême signifie d'autre part écoulement en faible entrefer. Les auteurs montrent une viscosité plus faible, mais l'effet semble sensible pour des entrefers inférieurs à 100 ou 200  $\mu\text{m}$ , et jusqu'à moins de 1  $\mu\text{m}$ , cette dernière situation n'étant pas courante en microinjection.

Nous avons étudié la façon de déterminer le coefficient de piezodépendance, dont la valeur dépend de l'architecture de la chaîne macromoléculaire, et le glissement et sa modélisation. Des modèles mathématiques permettent de décrire l'écoulement dans des géométries simples (capillaire par exemple) en tenant compte de la piezodépendance, de l'échauffement, de la compressibilité et du glissement. Nous allons utiliser et étendre ces modèles dans le chapitre 4, mais auparavant, nous allons caractériser deux polymères dans des rhéomètres conventionnels poussés dans leurs retranchements.

## **3 Chapitre Caractérisation rhéologique**

Dans ce chapitre, nous nous intéressons à l'étude expérimentale des propriétés rhéologiques du polymère à l'état fondu. Le but de notre étude est de déterminer le comportement visqueux du polymère dans un large domaine de taux de cisaillement. Dans un premier temps, nous déterminons les paramètres viscoélastiques dans le domaine linéaire. Pour cela, nous utilisons un rhéomètre oscillatoire plan-plan en mode dynamique. Dans un second temps, nous mesurons la viscosité dans une large gamme allant jusqu'aux fortes vitesses de déformation afin de caractériser le comportement en écoulement du matériau dans des parois minces. A cet effet, nous utilisons en rhéométrie capillaire des filières cylindriques de très petits diamètres allant jusqu'à 0,3 mm et de forts débits d'extrusion. Nous atteignons ainsi de hauts taux de cisaillement de l'ordre de  $10^6 \text{ s}^{-1}$ . Nous combinons alors les mesures du rhéomètre capillaire et celle du rhéomètre oscillatoire dynamique.

Ce chapitre comporte quatre parties, dont la première sert à présenter les matériaux étudiés et leurs propriétés en rapport avec nos conditions de transformation. La deuxième partie traite des paramètres des essais de rhéométrie dynamique et des résultats obtenus. La troisième partie présente les essais de rhéométrie capillaire, les observations sur les extrudats et les résultats obtenus. Enfin la quatrième partie est une interprétation des données rhéologiques.

### **3.1 Matériaux étudiés**

Nous avons choisi de travailler avec deux polymères de natures différentes, un semi cristallin, le polyéthylène haute densité, et un amorphe, le polyméthacrylate de méthyle. Notre choix s'est porté sur des matériaux déjà utilisés en microinjection. En effet, des études en microinjection et en rhéologie à hauts taux de cisaillement ont été présentées dans le chapitre bibliographique pour le PMMA (Liou et Chen, 2006 ; Lin et Yang, 2009 ; Kelly et al., 2009 ; Cardinaels, 2007) et pour le PEHD (Takahashi et al., 1985 ; Kelly et al., 2009 ; Cardinaels, 2007 ; Couch, 2000 ; Sedlacek et al., 2004).

#### **3.1.1 Polyéthylène haute densité**

Le polyéthylène haute densité, PEHD, dont la référence commerciale est ELTEX HD6070EA, est fourni par INEOS. Il appartient à la famille des polyoléfines. C'est un polymère translucide à structure semi cristalline avec une distribution de poids moléculaire étroite. Sa

masse moléculaire en poids  $M_w$  est de 75,8 kg/mol et son indice de polydispersité  $M_w/M_n = 5,6$  (avec  $M_n$  la masse moléculaire moyenne en nombre). La valeur modérée de  $M_w$  autorise une mise en œuvre aisée.

Sa température de transition vitreuse, très basse (voisine de  $-110\text{ }^{\circ}\text{C}$ ), et sa température de fusion, pouvant atteindre  $140\text{ }^{\circ}\text{C}$ , font prévoir un large intervalle de température d'utilisation. Il a une densité de  $960\text{ kg/m}^3$  (ISO 1872) et un indice de fluidité de  $7,6\text{ g/10 min}$ , à  $190\text{ }^{\circ}\text{C}$ , sous une charge de  $2,16\text{ kg}$  (ISO 1133).

La température de mise en œuvre conseillée est de  $190\text{ }^{\circ}\text{C}$  mais, en injection, elle peut aller jusqu'à  $260\text{ }^{\circ}\text{C}$ .

Le PEHD fourni est non stabilisé préalablement. Nous utilisons un stabilisant employé dans l'industrie, il s'agit de l'IRGANOX, avec un pourcentage d'environ  $0,5\%$ . Les mélanges sont réalisés à l'aide d'un mélangeur interne (Haake). Le mélangeage se fait à  $170\text{ }^{\circ}\text{C}$  pendant  $20\text{ min}$  avec une vitesse de rotation des rotors de  $100\text{ tr/min}$ . Les mélanges stabilisés seront transformés par compression en pastilles pour la rhéométrie dynamique. En revanche, le PEHD utilisé en rhéologie capillaire n'est pas stabilisé.

### **3.1.2 Polyméthacrylate de méthyle**

Le polyméthacrylate de méthyle, PMMA, dont la référence commerciale est PMMA ALTUGLAS VSE UVT (TP 727), est fourni par Arkema. Il s'agit d'un thermoplastique de type acrylique, c'est un polymère amorphe, il est transparent et il a un aspect lisse et brillant.

Il a une densité de  $1180\text{ kg/m}^3$  (ISO 1183) et un indice de fluidité de  $27\text{ g/10 min}$  à  $230\text{ }^{\circ}\text{C}$  et sous une charge de  $3,8\text{ kg}$  (ISO 1133). Il a un faible retrait au moulage, de  $0,2$  à  $0,6\%$ .

Avant la mise en œuvre, il est nécessaire de l'étuver entre  $3$  et  $4\text{ h}$  à  $90\text{ }^{\circ}\text{C}$ , sans quoi il y a une formation de bulles relativement volumineuses et visibles à l'œil nu et ce dès que le polymère est porté à l'état fondu.

Afin de déterminer la température de transition vitreuse ( $T_g$ ), nous avons réalisé une analyse calorimétrique différentielle à balayage. La  $T_g$  du PMMA utilisé est de  $119\text{ }^{\circ}\text{C}$ .

Sa température minimale de mise en œuvre par moulage est de  $190\text{ }^{\circ}\text{C}$  et elle peut aller jusqu'à  $265\text{ }^{\circ}\text{C}$  sans que le polymère ne se dégrade.

## 3.2 Rhéométrie oscillatoire dynamique

L'utilisation d'un rhéomètre oscillatoire dynamique permet d'étudier la rhéologie de polymères dans une gamme de fréquences importante et en particulier à faible fréquence ce qui permet de déterminer le plateau newtonien de la viscosité.

Pour certains matériaux, selon que l'énergie d'activation est plus ou moins importante, et en considérant le principe de superposition en temps température, nous pouvons tracer une courbe de viscosité maîtresse allant jusqu'aux hautes fréquences. C'est le cas, nous le verrons, pour le PMMA qui a une énergie d'activation importante.

### 3.2.1 Conditions des essais

Un rhéomètre oscillatoire dynamique ARES à déformation imposée en géométrie plan-plan est utilisé.

Des pastilles, de diamètre 25 mm et d'épaisseur 6 à 7 mm, ont été préparées dans une presse à une pression de 200 bar et portées à 180 °C pour le PEHD et à 195 °C pour le PMMA.

L'essai rhéologique est réalisé en plaçant une pastille entre deux disques dont l'un est fixe (celui du bas) et l'autre est soumis à une sollicitation sinusoïdale. Les surfaces des disques sont des plans parallèles de diamètre 25 mm avec un entrefer entre les plans de 1 à 1,5 mm.

C'est par un balayage en fréquence, c'est-à-dire en variant les pulsations entre 0,1 et 100 rad/s dans notre cas, que nous traçons l'évolution des modules élastique et visqueux du polymère,

ainsi que l'évolution de la viscosité complexe. Nous imposons au plan supérieur du rhéomètre dynamique un mouvement oscillatoire sinusoïdal de pulsation  $\omega$  et d'amplitude  $\epsilon_0$ , à déformation imposée. Nous mesurons le couple résultant  $C$  la contrainte  $\tau_0$  et le déphasage  $\delta$ , à d'où nous en déduisons les composantes visqueuse  $G''$  et élastique  $G'$  du module complexe

$$G^* = G' + iG''$$

$$G' = \frac{\tau_0}{\epsilon_0} \cos \delta \quad G'' = \frac{\tau_0}{\epsilon_0} \sin \delta$$

$$\tau_0 = \frac{3C}{2\epsilon_0} \quad \tan \delta = \frac{G''}{G'}$$

Enfin, nous écrivons la viscosité complexe  $\eta^*$ , dont nous assimilerons le module à  $\eta$  par le

principe Cox-Mertz que nous présentons plus loin.

Les essais rhéologiques sont réalisés en travaillant à déformation imposée et sont répétés pour une gamme de températures variables. Avec le principe de superposition temps-température, en utilisant le facteur de glissement  $a_T$ , nous traçons la courbe maîtresse de chacun des



modules et de la viscosité à partir des faisceaux de courbes obtenues. Nous travaillons sous atmosphère contrôlée pour éviter les reprises d'eau, surtout pour le PMMA.

### 3.2.2 Domaine linéaire

La mesure des constantes rhéologiques se fait dans le domaine linéaire du polymère, c'est-à-dire, dans le domaine où nous n'avons pas de variation des modules en fonction de la déformation. Il est dès lors nécessaire de déterminer ce domaine de déformation pour les différentes températures. Nous étudions, à une pulsation (0,1 rad/s) et à une température donnée, l'évolution des composantes élastique et visqueuse du module par rapport au pourcentage de la déformation. Les courbes de ces évolutions pour le PEHD et le PMMA sont données respectivement par la Figure 3-1 et la Figure 3-2. Nous vérifions également le domaine linéaire à différentes températures. Moins la température est importante, plus faible est la déformation pour rester dans le domaine linéaire.

Le domaine linéaire du PEHD à 180 °C est obtenu pour une déformation allant jusqu'à 30 %, tandis qu'à 140 °C, ce domaine est respecté pour des taux de déformation allant jusqu'à 10 %. Nous choisissons pour le reste des essais avec le PEHD de travailler avec un taux de déformation de 10 %. A 140 °C, nous observons que le module élastique  $G'$  n'est plus constant pour les faibles déformations en dessous de 0,4 %.

Dans le cas du PMMA, le domaine linéaire à 200 °C est respecté pour une déformation inférieure à 40 %, tandis qu'à 140 °C ce domaine se réduit à des déformations inférieures à 5 %. Nous utiliserons cette dernière valeur de déformation pour la suite de l'étude.

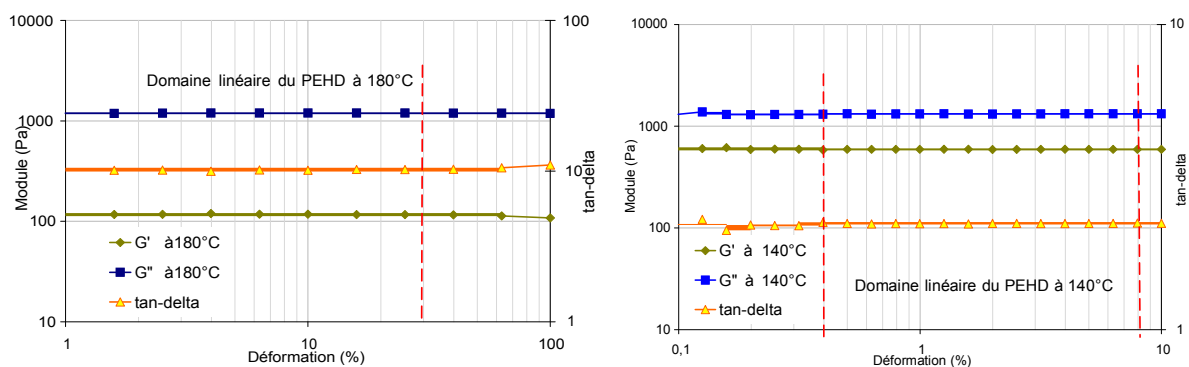
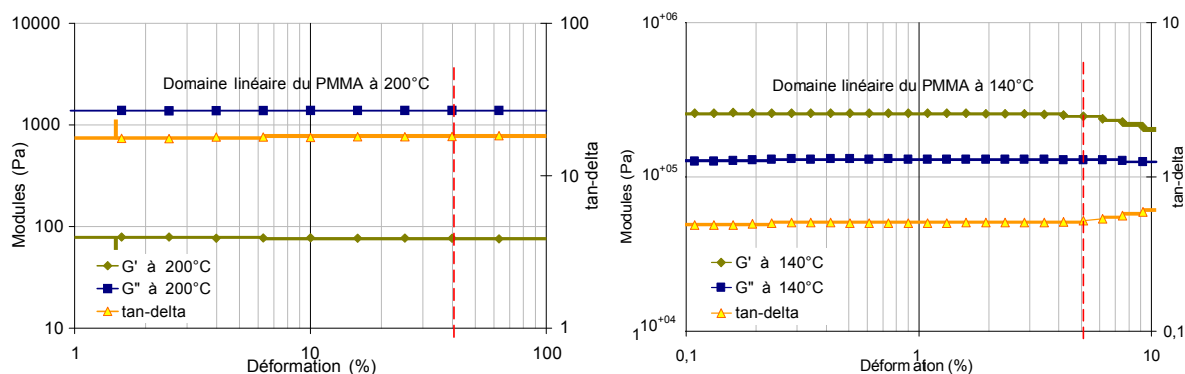


Figure 3-1 : Domaine linéaire du PEHD à 140 °C et à 180 °C.



**Figure 3-2 : Domaine linéaire du PMMA à 140 °C et à 200 °C.**

### 3.2.3 Stabilité

Nous vérifions la stabilité des composantes élastiques ( $G'$ ) et visqueuses ( $G''$ ) du module pour un cisaillement à déformation imposée, à température constante et à fréquence angulaire imposée pendant un temps déterminé.

Pour le PEHD, nous appliquons une pulsation de 0,1 %, une déformation imposée de 10 % et une température de 180 °C et nous évaluons la stabilité des modules au cours du temps. Nous réalisons cet essai avec un PEHD non stabilisé préalablement et avec un PEHD avec 0,5 % du stabilisant choisi. La Figure 3-3 montre la superposition des deux cas pour mettre en évidence l'effet du stabilisant.

Dans le cas du polymère sans stabilisant, le module  $G'$  croît de 10 % au bout de 700 s. Nous estimons que c'est le temps pour lequel le polymère reste stable. Au-delà de ce temps le polymère commence à se dégrader de façon croissante. Tandis que, pour le polymère stabilisé, les modules restent constants pendant le temps de l'essai qui est d'environ une heure. Le fait de rajouter même à faible pourcentage le stabilisant s'avère efficace. De même, nous observons que les valeurs des modules à cette température sont de même ordre pour les deux cas étudiés, autrement dit, le stabilisant n'agit pas sur les propriétés rhéologiques du matériau.

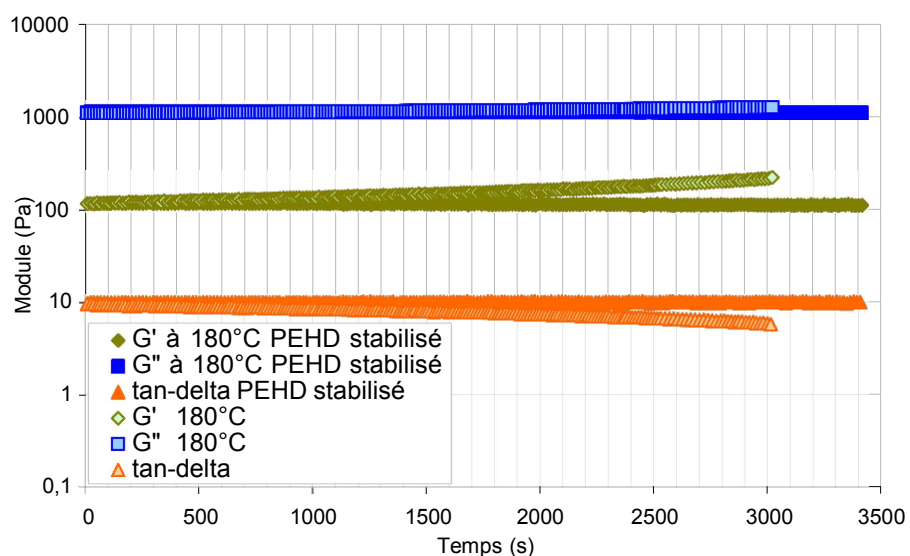


Figure 3-3 : Stabilité du PEHD avec et sans stabilisant à 180 °C.

Pour le PMMA, nous traçons  $G'$  et  $G''$  pour un cisaillement à déformation imposée de 5 %, à température constante de 220 °C, à fréquence angulaire imposée de 1 rad/s et pour une durée de 1h40.

Nous constatons, sur la Figure 3-4, que  $G'$ ,  $G''$  et  $\tan \delta$  (rapport entre  $G'$  et  $G''$ ) sont constants pendant la durée de l'essai. Nous en déduisons que le matériau ne subit pas des altérations notables pendant le temps de l'essai.

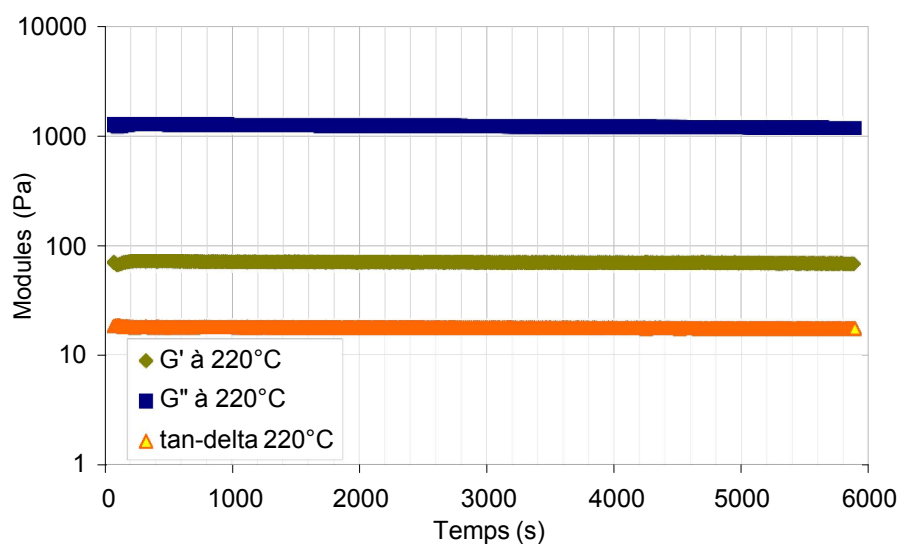


Figure 3-4 : Stabilité du PMMA à 220 °C.

### 3.2.4 Résultats

Nous cherchons à déterminer les propriétés viscoélastiques du polymère dans le domaine linéaire. Nous traçons les évolutions des composantes élastique et visqueuse du module ainsi que celles de la viscosité complexe, en fonction de la pulsation pour une série de températures. Nous superposons par la suite les courbes de viscosité suivant un facteur de glissement que nous déterminons.

#### 3.2.4.1 PEHD

##### *a) Modules élastique et visqueux et viscosité complexe*

La déformation imposée est de 10 % pour les six températures allant de 140 à 190 °C, avec un pas de 10 °C. La Figure 3-5 et la Figure 3-6 présentent respectivement les courbes des modules élastique et visqueux et les courbes du module de la viscosité complexe pour les différentes températures.

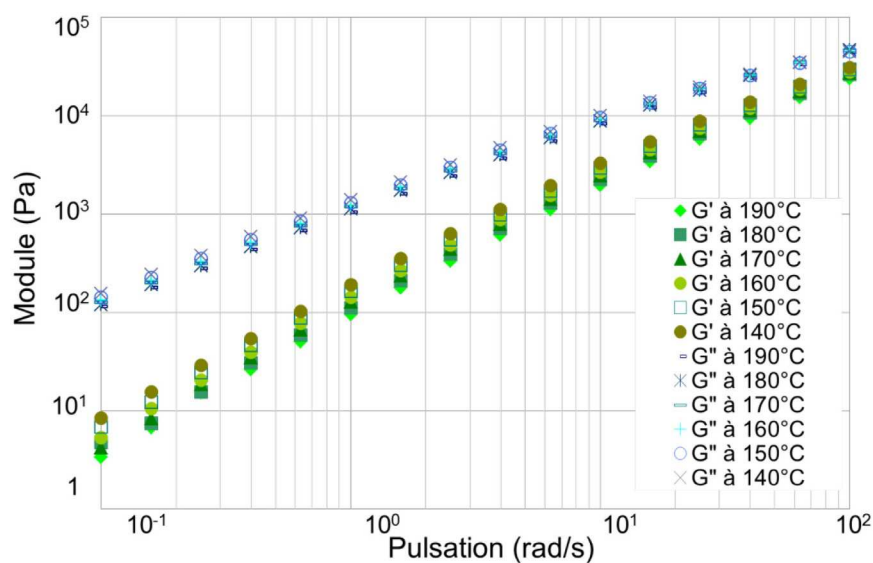


Figure 3-5 : Courbes des modules visqueux et élastique pour les températures de 140 °C à 190 °C, PEHD.

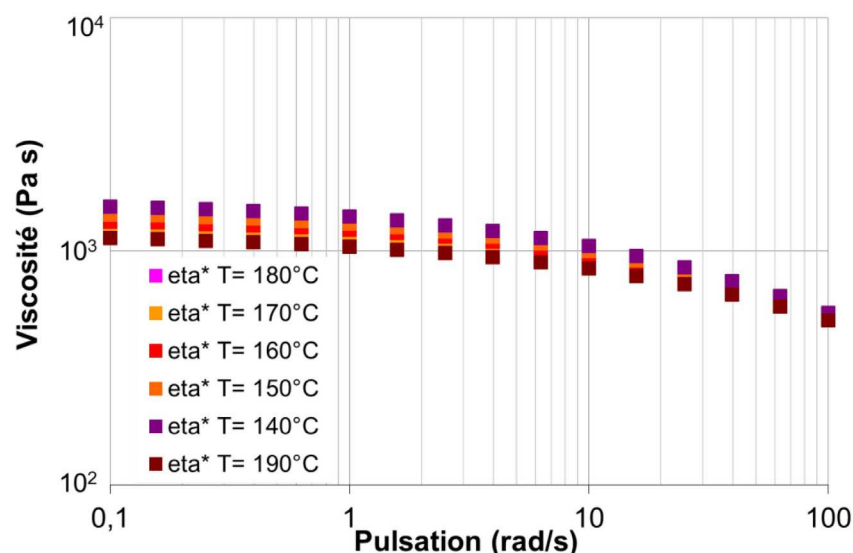


Figure 3-6 : Courbes des viscosités pour les températures de 140 °C à 190 °C, PEHD.

Les allures des courbes de  $G'$ ,  $G''$  et module de  $\diamond\diamond^*$  pour les différentes températures sont semblables. Pour le PEHD, les écarts entre ces courbes, en variant la température, ne sont pas

très importants.

### ***b) Courbe maîtresse et coefficient de glissement***

En faisant glisser les courbes à différentes températures, il est possible de créer des courbes maîtresses. Il s'agit de superposer toutes les courbes par rapport à une courbe choisie à une température de référence. Ceci revient à la remise à l'échelle de la pulsation pour chaque température. La pulsation est multipliée par un facteur appelé facteur de glissement  $a_T$ , les valeurs des modules restant inchangées, tandis que celles de la viscosité complexe sont divisées par ce même facteur  $a_T$ .

La superposition des courbes des modules élastique et visqueux et celle des courbes de la viscosité sont représentées respectivement par la Figure 3-7 et la Figure 3-8.

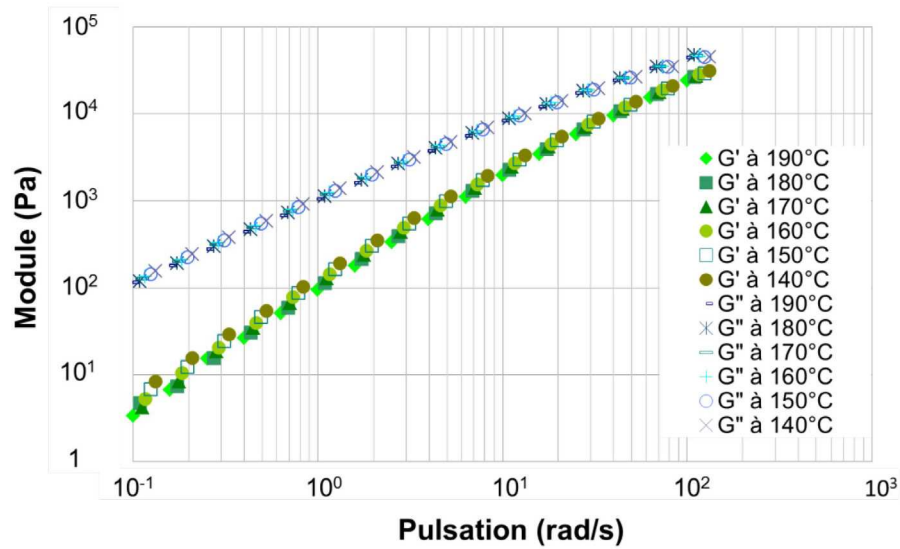


Figure 3-7 : Courbes maîtresses des modules visqueux et élastique à  $T_{ref}=190\text{ }^{\circ}\text{C}$ , PEHD.

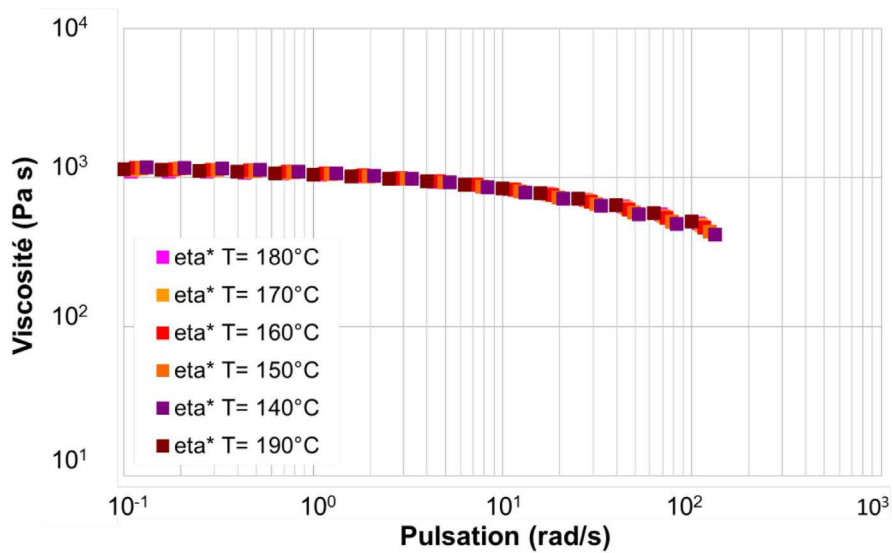


Figure 3-8 : Courbe maîtresse de la viscosité à  $T_{ref}=190\text{ }^{\circ}\text{C}$ , PEHD.

La courbe maîtresse de la viscosité décrit essentiellement le plateau newtonien. Du fait de la faible énergie d'activation du PEHD, la superposition des courbes ne permet pas d'élargir significativement le domaine de fréquence étudié.

L'évolution du facteur du glissement en fonction de l'inverse de la température pour le PEHD est donnée par la Figure 3-9.

Le facteur de glissement  $a_T$  suit une loi de variation avec la température qui est la loi d'Arrhenius définie par l'équation suivante :

$$a_T(T) = \exp \left[ \frac{E_d}{R} \left( \frac{1}{T} - \frac{1}{T_{ref}} \right) \right] \quad \text{Équation 3-1}$$

Où  $E$  l'énergie d'activation,  $R$  la constante des gaz parfaits et  $T_{ref}$  la température de référence. Dans le cas du PEHD, nous choisissons pour courbe de référence celle à la température de 190 °C. La pente de la courbe nous renseigne sur le rapport entre l'énergie d'activation et la constante des gaz parfait. Le Tableau 3-1 donne la valeur de l'énergie d'activation à la température de référence choisie.

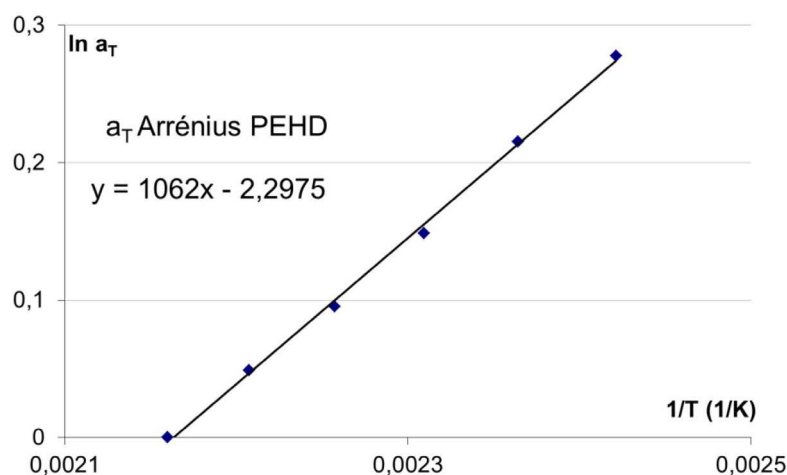


Figure 3-9 : Evolution du facteur du glissement selon une loi Arrhenius, PEHD.

	$T_{ref}$ (°C)	$E$ (kJ/mole)
PEHD	190	8,83

Tableau 3-1 Paramètres de la loi de glissement temps-température, PEHD.

### 3.2.4.2 PMMA

#### a) Modules élastique et visqueux et viscosité complexe

Nous réalisons des balayages en fréquence avec une déformation imposée de 5 % pour les températures allant de 140 à 200 °C, avec un pas de 10 °C. La Figure 3-10 et la Figure 3-11 présentent respectivement les courbes des modules élastique et visqueux et les courbes de la viscosité pour les différentes températures.

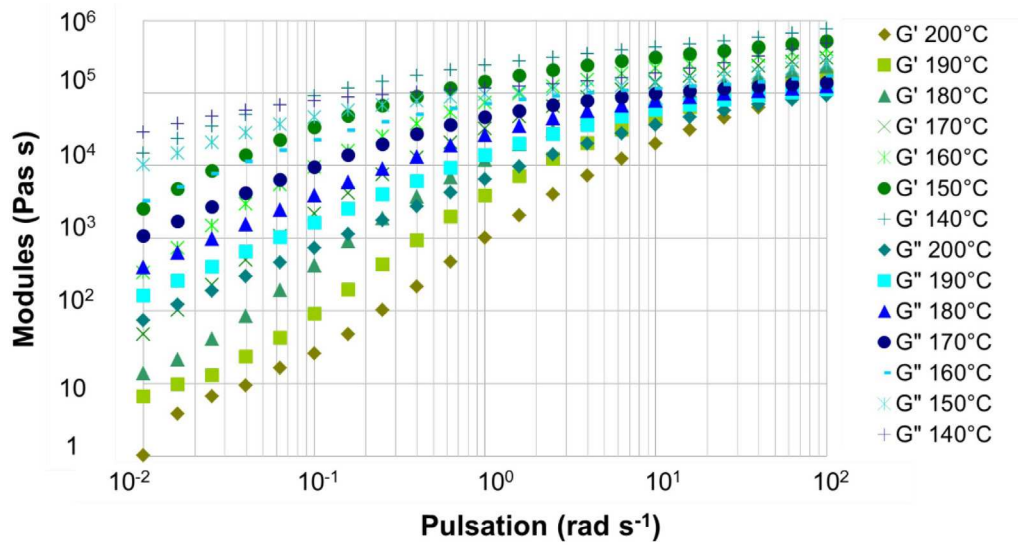


Figure 3-10 : Courbes des modules visqueux et élastique pour les températures de 140 °C à 200 °C, PMMA.

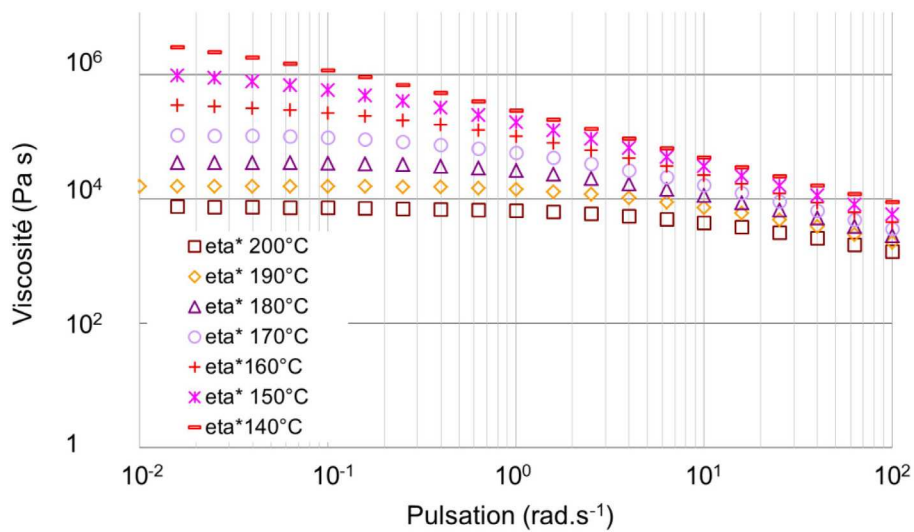


Figure 3-11 : Courbes des viscosités pour les températures de 140 °C à 200 °C, PMMA.

L'écart entre les courbes de viscosité est élevé : à la pulsation de  $1,6 \cdot 10^{-2} \text{ rad.s}^{-1}$ , la viscosité passe de  $7,6 \cdot 10^3 \text{ Pa.s}$  à 200 °C à  $2,8 \cdot 10^6 \text{ Pa.s}$  à 140 °C.

***b) Courbe maîtresse et coefficient de glissement***



Comme précédemment, nous faisons glisser les courbes pour obtenir une courbe maîtresse à une température que nous choisissons égale à 200 °C. Le résultat obtenu est représenté sur les figures Figure 3-14 et Figure 3-15.

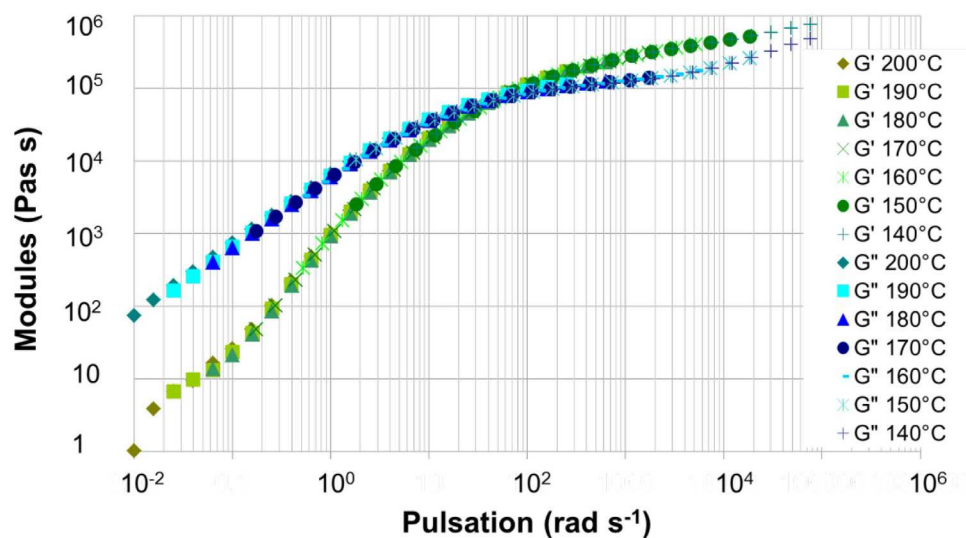


Figure 3-12 : Courbes maîtresses des modules visqueux et élastique à  $T_{ref}=200$  °C, PMMA.

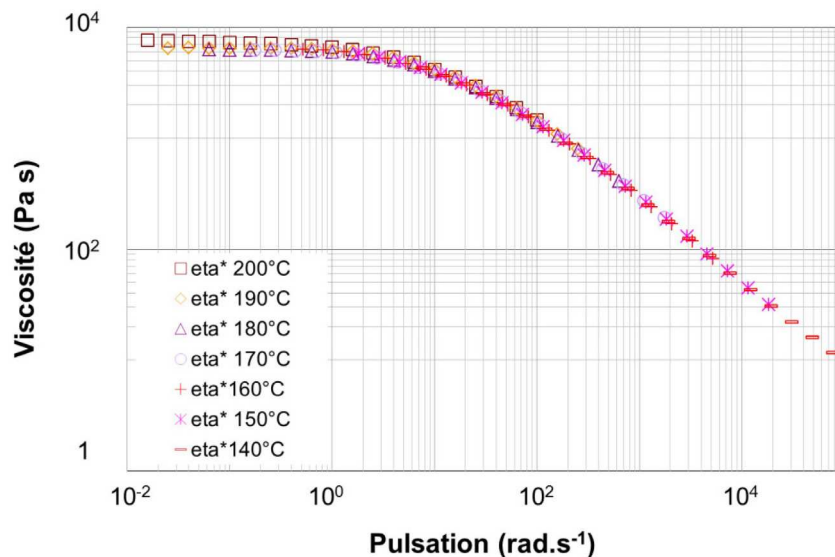


Figure 3-13 : Courbe maîtresse de la viscosité à  $T_{ref}=200$  °C, PMMA.

L'énergie d'activation du PMMA étant très importante, nous parvenons à tracer une courbe maîtresse de la viscosité qui balaye un large spectre de fréquence, entre  $10^{-2}$  et  $10^5$   $s^{-1}$ , atteignant ainsi de très hautes fréquences.

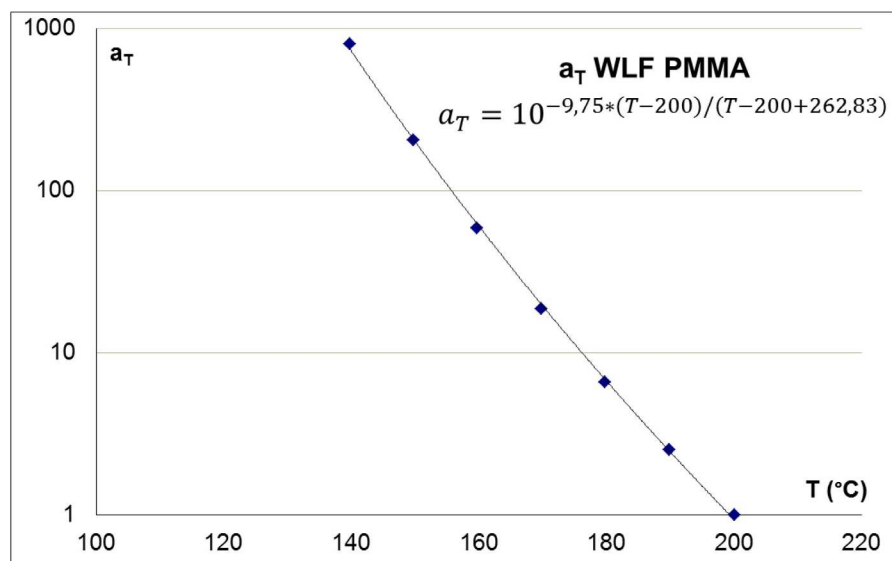
Nous remarquons également que, lorsque la fréquence augmente, le comportement du matériau passe d'une dominante visqueuse à une dominante élastique. En effet, la courbe du module élastique passe au-dessus de celle du module visqueux à haute fréquence, à partir de  $7,8.10^4 \text{ rad.s}^{-1}$ .

L'évolution du coefficient de glissement  $a_T$  avec la température est représentée sur la Figure 3-14. Cette évolution peut être représentée par une loi WLF (Williams, Landel, Ferry, 1955), le PMMA étant amorphe, décrite par l'équation ci-dessous :

$$\log a_T = -\frac{C_1(T - T_{ref})}{T - T_{ref} + C_2}$$

Où  $C_1$  et  $C_2$  sont des constantes.

A noter que la température de référence est en toute rigueur celle de la transition vitreuse mais, nous avons choisi une température de référence différente et l'équation de WLF reste valable avec les constantes qui changent.



**Figure 3-14 : Evolution du facteur du glissement selon une loi WLF, PMMA.**

Nous avons aussi tracé l'évolution du logarithme du facteur de glissement en fonction de l'inverse de la température, Figure 3-15. Nous obtenons une évolution très proche d'une droite, ce qui fait qu'une loi d'Arrhenius peut aussi être utilisée.

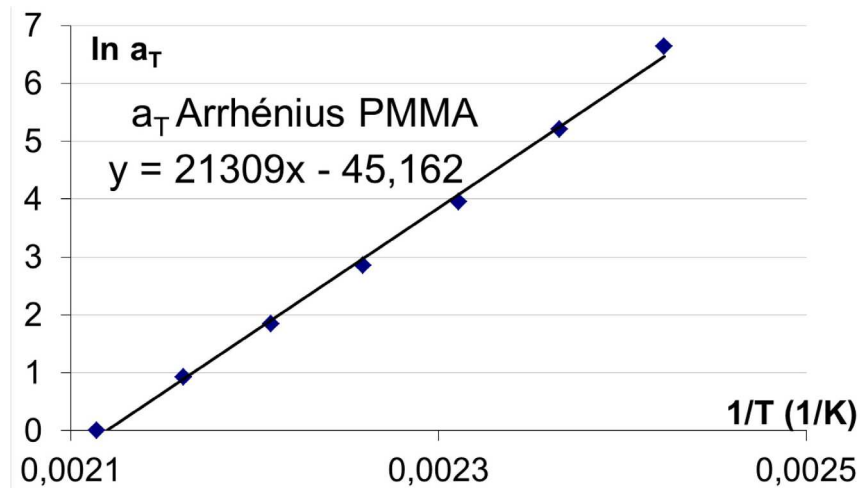


Figure 3-15 : Evolution du facteur du glissement selon une loi Arrhenius, PMMA.

Le Tableau 3-2 donne la valeur de l'énergie d'activation et les constantes de la loi WLF à la température de référence choisie pour le PMMA.

	$T_{ref}$ (°C)	E (kJ/mole)	$C_1$	$C_2$ (K)
PMMA	200	177,29	9,74	262,83

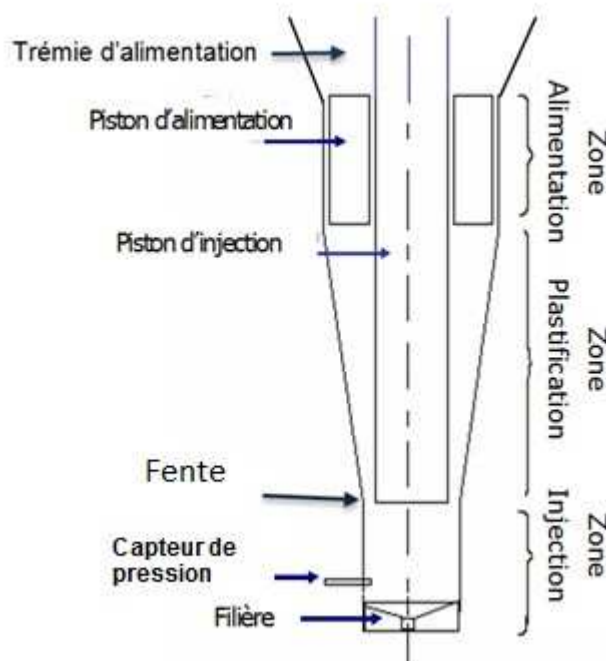
Tableau 3-2 Paramètres des lois de glissement temps-température, PMMA.

L'énergie d'activation du PMMA est presque cent fois plus élevée que celle du PEHD.

## 3.3 Rhéométrie capillaire

### 3.3.1 Description du matériel de mesure

Le rhéomètre capillaire utilisé pour nos essais est le Rhéoplast. C'est un système doté d'une zone de mesure comme dans un rhéomètre capillaire classique et d'une partie supplémentaire placée en amont qui permet la plastification du polymère. Son schéma est donné par la Figure 3-16



**Figure 3-16 : Schéma du Rhéoplast.**

Les étapes et les paramètres de réglage dans un essai sur le Rhéoplast sont décrits dans ce qui suit.

La première étape est celle du remplissage, où le polymère, en granulé, est transféré de la trémie d'alimentation dans la zone d'alimentation. Le piston d'alimentation est alors relevé pour permettre le passage des granules. L'étape suivante est celle de la plastification pendant laquelle le polymère est poussé par le piston d'alimentation dans un système délimité par le piston central cylindrique et une chambre conique. Le piston central tourne à une vitesse angulaire et permet de cisailier le polymère. Selon le matériau utilisé, nous pouvons ajuster le mécanisme de plastification en jouant sur trois paramètres à savoir, la pression sur le piston d'alimentation, la vitesse de rotation du piston central et la valeur de la fente entre le piston central et la chambre conique. Le polymère fond par auto échauffement dû au cisaillement et par conduction de la chaleur apportée par les colliers chauffants placés au niveau du cylindre extérieur et est transféré progressivement dans le réservoir. Quand le réservoir est plein, une pression seuil en bas du réservoir est détectée ( $P_s = 5 \text{ bar}$ ), elle conditionne la fin du cisaillement.

L'étape suivante est dite de relaxation. Le but est d'homogénéiser la température pendant 300 s. Nous pouvons comparer ce temps au temps de pénétration de la chaleur donné par

$t = \frac{R^2}{a}$ , où  $a$  est la diffusivité thermique, de l'ordre de  $2.10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$  et  $R = 8.10^{-3} \text{ m}$  est le rayon du réservoir. Nous trouvons  $t = 320 \text{ s}$  ce qui n'est pas loin du temps de relaxation imposé. Ce temps est donc suffisant pour homogénéiser la température. Enfin, le polymère est poussé par le piston central dans un capillaire ayant un convergent conique comme dans un rhéomètre capillaire classique. Le piston d'injection est piloté en vitesse de déplacement ce qui induit un débit imposé. Le capteur de pression placé en amont de la filière permet de déterminer la perte de charge dans la filière pour chaque débit d'injection après correction de Bagley.

### 3.3.2 Conditions de mesure

Nous utilisons trois diamètres de filières  $D$  de 1, 0,5 et 0,3 mm, et trois longueurs  $L$  pour chaque diamètre avec des rapports  $L/D$  de 0, 4, 8 et 16 pour le diamètre 1 mm,  $L/D$  de 4, 8 et 16 pour le diamètre 0,5 mm et  $L/D$  de 4, 8 et 10 pour le diamètre 0,3 mm. L'utilisation de trois longueurs de filière pour chaque diamètre permet de réaliser les corrections sur les pressions d'entrée qu'on décrit ultérieurement. L'utilisation de petits diamètres nous a permis d'étudier la rhéologie à des taux de cisaillement de plus en plus importants, vu que le taux de cisaillement apparent évolue proportionnellement à l'inverse du rayon au cube.

$$\dot{\gamma}_{app} = \frac{4Q}{\pi R^3}$$

Certaines filières ont été équipées d'une sonde de température pour permettre l'évaluation de la dissipation dans la filière au cours de l'écoulement. Un thermocouple de diamètre 1 mm est placé dans le corps de la filière parallèlement à la longueur du capillaire à une distance radiale par rapport au centre du capillaire de 5 mm. Ce thermocouple ne fournira qu'un minorant de l'évolution de la température lors de la mesure rhéologique.

#### **a) PEHD**

Le PEHD est étudié à 190 °C et à 205 °C sans qu'il soit au préalable stabilisé. Il est donc nécessaire de préciser la durée de l'essai et le nombre d'essais nécessaires pour évacuer le polymère qui reste dans la zone de plastification.

En effet, un cycle comporte un temps de plastification inférieur à 100 s, un temps de relaxation de 300 s et un temps de mesure qui peut aller jusqu'à 100 s. Ce qui fait au total pour un cycle 500 s, soit environ 8 min.

Le volume du pot (zone évacuée pendant un cycle) est :

$$V_{pot} = L\pi R^2 = 80.\pi.8^2 = 16085 \text{ mm}^3 = 16 \text{ cm}^3$$

où  $L$  et  $R$  sont respectivement la longueur et le rayon du pot.

Le volume de la zone de plastification,  $V_{plast}$ , est celui d'un tronc conique duquel on retranche le volume du piston d'injection.

$$V_{plast} = \frac{1}{3} \pi \cdot L_l \cdot (R^2 + R R_l + R_l^2) - L_l \pi R^2$$

où  $L_l$  est la hauteur du cône et  $R$  et  $R_l$  sont les rayons inférieur et supérieur du cône.

$$V_{plast} = \frac{1}{3} \pi \cdot 99,51 \cdot (8^2 + 8 \cdot 22,5 + 22,5^2) - 99,51 \cdot \pi \cdot 8^2 = 58846 \text{ mm}^3 = 58 \text{ cm}^3$$

Toutefois, le volume de la zone de plastification n'est pas entièrement fluide. Presque le tiers de cette zone est formé de grains compactés.

Tenant compte de cette approximation, il faudra vider à peu près un pot pour évacuer tout le polymère fondu. Ce qui fait un temps de séjour maximum pour le polymère de 8 minutes. Selon la courbe de stabilité (Figure 3-3), pour une température de 180°C, le polymère reste stable jusqu'à 700 s. Nous pouvons donc supposer que, pour nos températures d'essais, nous ne sommes pas confrontés à la dégradation du polymère.

### ***b) PMMA***

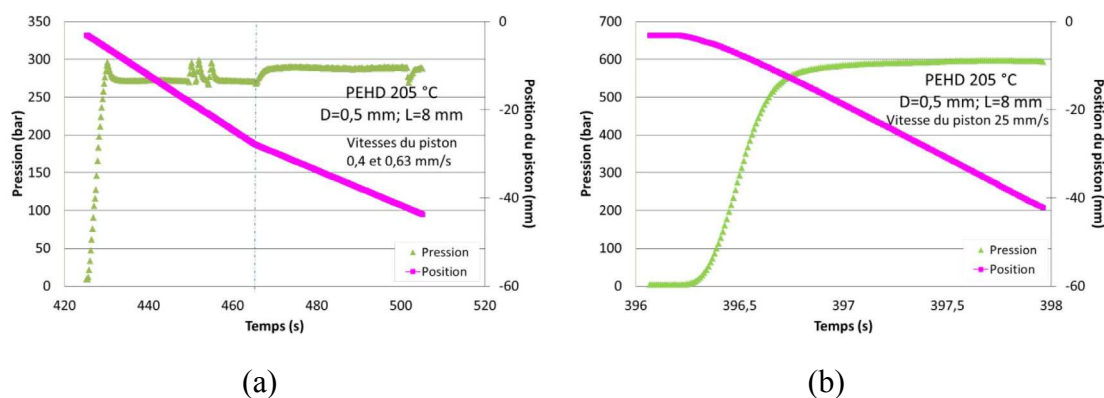
Le PMMA est d'abord étudié à 200, 195 et 190 °C, en utilisant les filières de diamètre 1 mm, Les légères variations de température sont dues à la régulation thermique du Rhéoplast qui n'est pas parfaite. La température indiquée est mesurée à la fin de la période dite de relaxation, donc avant la mesure rhéologique, en introduisant un thermocouple par l'orifice du capillaire. Nous rencontrons des difficultés considérables lors de l'étude du PMMA même à faibles taux de cisaillement, où les paliers de pressions ne s'établissent pas pour les plus petites valeurs de débit. Nous ne pouvons atteindre des hauts taux de cisaillement à cause de l'écoulement chaotique en sortie de filière et de paliers de pression inexploitable. Nous travaillons alors à plus haute température, soit 250 °C, avec les filières de diamètres 0,5 et 0,3 mm. Nous parvenons alors à exploiter les courbes de pression, malgré la présence de défauts.

### 3.3.3 Courbes d'écoulement, défauts et thermique

#### 3.3.3.1 Paliers de pression

##### a) PEHD

Les courbes d'établissement de la pression en fonction du temps pour différentes vitesses de déplacement du piston sont présentées par la Figure 3-17, pour un écoulement du PEHD dans une filière de diamètre 0,5 mm et de longueur 8 mm à 205 °C.



**Figure 3-17 : Courbes d'établissement de la pression en écoulement dans une filière de diamètre 0,5 mm et de longueur 8 mm à des vitesses différentes, PEHD**

Au palier de pression à vitesse imposée de 0,63 mm/s, équivalente à un débit de  $126,7 \text{ mm}^3 \text{s}^{-1}$  et un taux de cisaillement apparent de  $10^4 \text{ s}^{-1}$ , Figure 3-17-a, nous observons des oscillations de la valeur de pression qui ont lieu en même temps que l'apparition du défaut bouchon en sortie de filière. Nous présentons en détail ce phénomène dans le paragraphe suivant (3.3.3.2 a). Ces oscillations ne sont pas continues sur tout le palier.

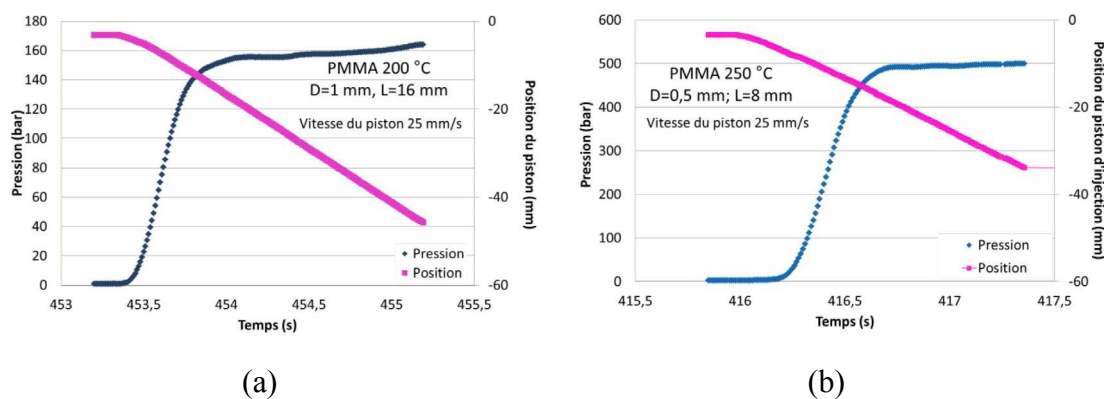
Le palier de pression suivant, à une vitesse de 0,4 mm/s, soit  $80,5 \text{ mm}^3 \text{s}^{-1}$  et  $6550 \text{ s}^{-1}$ , est correct mais, est à un niveau plus important alors que nous diminuons le débit. Notons que les pics de la zone d'oscillation donnent une pression légèrement plus grande que celle du palier suivant, c'est pour cela que malgré la présence de défauts en sortie de filière, nous choisissons la valeur de pression en haut des pics dans cette zone pour la suite de l'exploitation des mesures rhéologiques. En effet, nous pensons que la pression globalement plus basse peut être due au glissement du polymère à la paroi du capillaire.

Jusqu'à la vitesse de 25 mm/s, équivalente à un débit de  $5 \cdot 10^3 \text{ mm}^3 \text{ s}^{-1}$  et un taux de cisaillement apparent de  $4 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$  nous obtenons des paliers de pression réguliers qui restent parfaitement exploitables.

La Figure 3-17-b montre qu'à forte vitesse, l'essai dure moins de 1,75 s. Il faut moins de 0,25 s pour que la vitesse du piston s'établisse. Le temps d'établissement de la pression est largement supérieur, de l'ordre de 1,25 s. Nous mettons donc en évidence le comportement viscoélastique du matériau.

### b) PMMA

Nous présentons deux courbes d'établissement de la pression en fonction du temps pour un écoulement dans une filière de diamètre 1 mm et de longueur 16 mm et une filière de diamètre 0,5 mm et de longueur 8 mm, à une vitesse de déplacement du piston de 25 mm/s, soit un débit de  $5 \cdot 10^3 \text{ mm}^3 \text{ s}^{-1}$  et des taux de cisaillement apparents respectifs de  $5 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$  et  $4 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$ .



**Figure 3-18 : Courbes d'établissement de la pression en écoulement dans deux filières de rapport  $L/D = 16$  à une vitesse du piston de 25 mm/s, Diamètres 1 et 0,5 mm et températures respectives 200 et 250 °C**

### PMMA

Quelques irrégularités sont observées sur le palier de pression de la Figure 3-18a, et la pression ne semble pas s'établir complètement mais, les courbes restent exploitables en prenant une valeur moyenne sur le palier de pression et en considérant jusqu'à trois essais réalisés dans les mêmes conditions. Nous remarquons qu'avec la filière de diamètre 0,5 mm et de longueur 8 mm, à la vitesse maximale de 25 mm/s, Figure 3-18-b, le temps d'établissement de la vitesse est d'environ 0,5 s, légèrement inférieur à celui du PEHD, Figure 3-17-b, cela peut être dû au niveau de pression largement inférieur. La pression ne semble pas s'établir

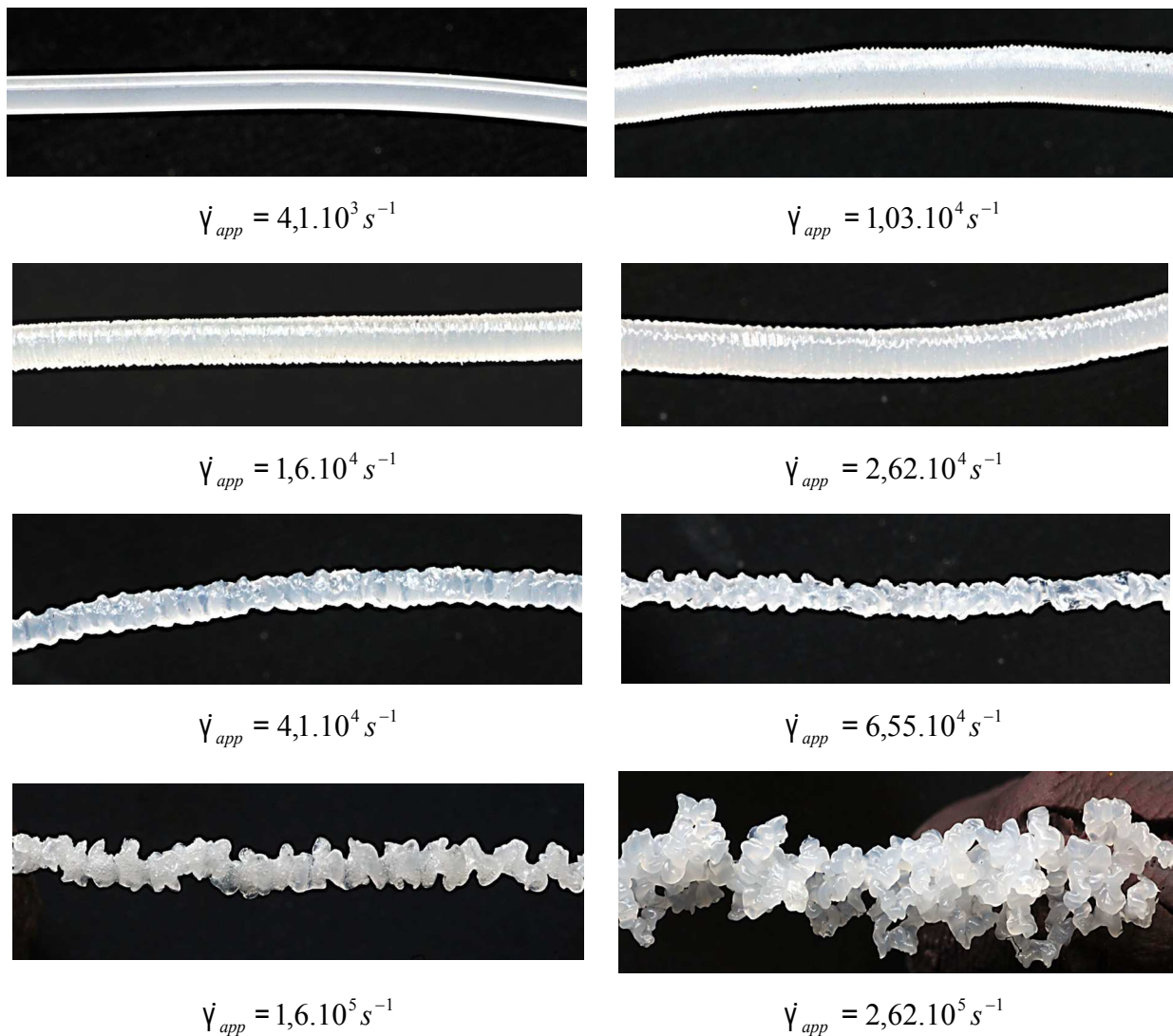


complètement, mais nous pouvons estimer quand même un temps de l'ordre de 1,4 s, légèrement plus grand que celui du PEHD.

### 3.3.3.2 Défauts d'extrusion

#### a) PEHD

Les défauts classiques décrits dans la littérature sont retrouvés, à savoir les défauts de surface et les défauts volumiques.



**Figure 3-19 : Photos du jonc extrudé dans la filière de diamètre 0,5 mm et de longueur 4 mm pour différents taux de cisaillement apparents, 205 °C, PEHD.**

Nous prenons comme exemple l'extrusion dans la filière de diamètre 0,5 mm et de longueur 4 mm. Les défauts d'extrusion du PEHD sont représentés sur la Figure 3-19.

Le jonc extrudé a tout d'abord un aspect lisse, avec un gonflement de 1,6 pour les taux de cisaillement apparent allant de  $10^2$  à  $10^3 \text{ s}^{-1}$ . A partir d'un taux de cisaillement de  $10^4 \text{ s}^{-1}$ , la surface du jonc devient légèrement rugueuse avec une perturbation régulière, il s'agit du défaut de "peau de requin" et la valeur du gonflement est alors de 2. Pour des taux de cisaillement supérieurs à  $1,6 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$  et inférieur à  $2,6 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$ , nous observons une zone instable qui est décrite par la succession régulière d'une morphologie lisse et une autre rugueuse (non présentée sur la Figure 3-19 ici car la période est très longue pour que l'on puisse rendre compte sur une photo). Il s'agit du défaut bouchon, ou '*stick slip*', ou encore '*spurt*'. Ce défaut se traduit également par des oscillations régulières de la pression. La zone bouchon est suivie d'une zone homogène, à partir de  $2,6 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$ , où le jonc a un aspect lisse ou légèrement hélicoïdal et où le gonflement n'évolue plus. L'extrudat a ensuite, à  $4,1 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$ , un aspect hélicoïdal de plus en plus irrégulier avec un gonflement important jusqu'à un taux de cisaillement de  $1,6 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$ . Au-delà de  $2,6 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$ , l'écoulement devient chaotique, avec un aspect du jonc qui est extrêmement perturbé.

#### ***b) PMMA***

Le PMMA présente des défauts hélicoïdaux puis chaotiques pour les forts taux de cisaillement (de l'ordre de  $10^4 \text{ s}^{-1}$ ). Le gonflement en sortie de filière n'est pas aussi important que pour le PEHD.

### **3.3.3.3 Courbes d'écoulement**

Nous étudions les courbes d'évolution de la pression en fonction du taux de cisaillement apparent pour l'écoulement dans les différentes filières utilisées. Le maximum du débit d'injection du Rhéoplast étant de  $5 \cdot 10^3 \text{ mm}^3 \text{ s}^{-1}$ , nous nous retrouvons avec des maximums de taux de cisaillement apparents qui sont respectivement de  $5 \cdot 10^4$ ,  $4 \cdot 10^5$  et  $2 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$  pour les diamètres de filières 1, 0,5 et 0,3 mm.

#### ***a) PEHD***

Nous représentons sur les Figure 3-20, Figure 3-21 et Figure 3-22, les courbes d'écoulement du PEHD dans les filières des trois diamètres respectifs 1, 0,5 et 0,3 mm et avec pour chaque diamètre les trois rapports L/D correspondants. Pour les filières de diamètre 1 mm, la température de l'étude est de  $190^\circ \text{C}$ . Tandis que dans les filières de diamètres 0,5 et 0,3 mm, et parce que l'écoulement devient plus difficile, la température de mise en œuvre est de  $205^\circ \text{C}$ . En effet, à  $190^\circ \text{C}$ , nous rencontrons les défauts d'extrusion dès les faibles taux de

cisaillement et les plateaux de pression ne sont plus exploitables pour les petits diamètres. L'augmentation de la température jusqu'à 205 °C repousse le phénomène.

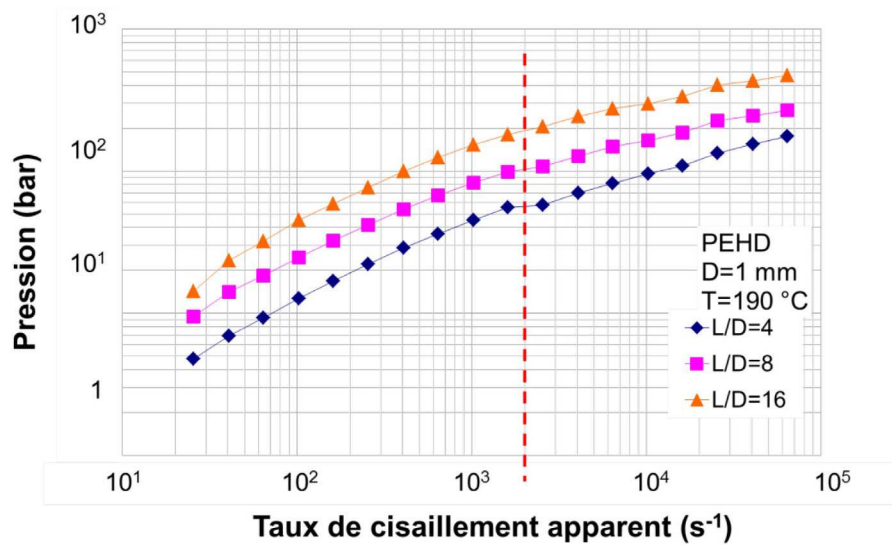


Figure 3-20 : Courbes d'écoulement dans les filières de diamètres 1 mm à 190 °C, PEHD.

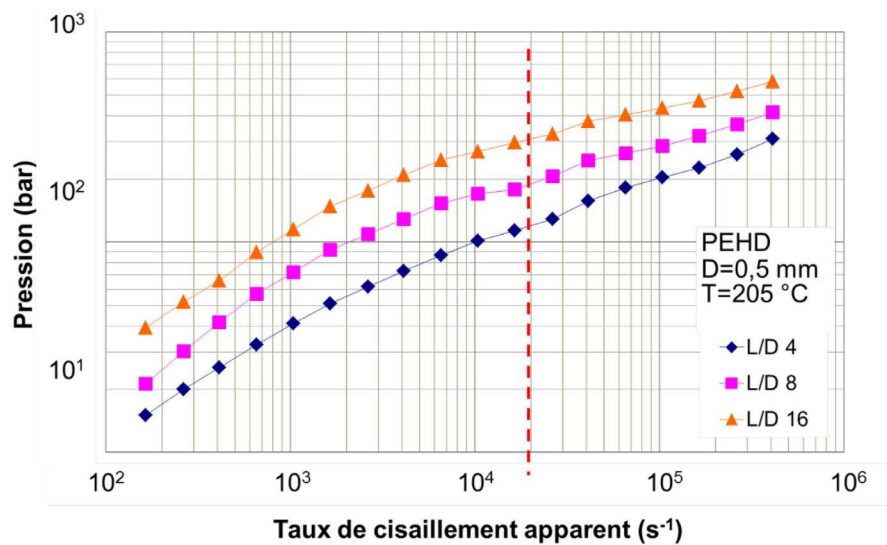


Figure 3-21 : Courbes d'écoulement dans les filières de diamètre 0,5 mm à 205 °C, PEHD.

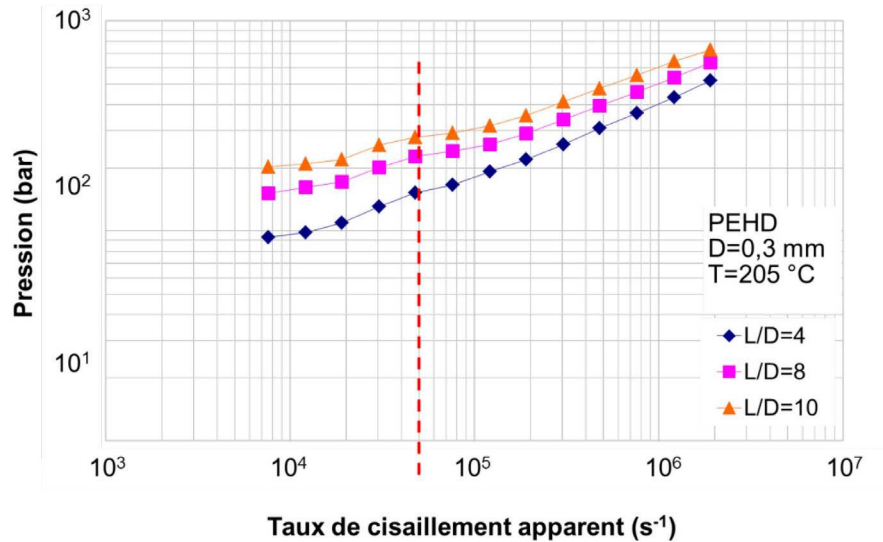


Figure 3-22 : Courbes d'écoulement dans les filières de diamètre 0,3 mm à 205 °C, PEHD.

Sur les courbes d'écoulement, nous n'observons pas de discontinuité comme il est parfois mentionné en littérature dans les cas des polymères linéaires flexibles comme le PEHD.

Nous remarquons néanmoins une rupture de pente à partir d'un certain taux de cisaillement (indiqué sur les graphes par des traits discontinus. Par exemple, pour les filières de diamètre 0,5 mm, ce changement de courbure apparaît vers  $1,6 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$ . Ceci peut être expliqué par différents phénomènes qui peuvent intervenir à de tels taux de cisaillement. Parmi lesquels, l'effet de la dissipation de chaleur, les problèmes de glissement à la paroi du polymère et les instabilités. Ces grandeurs seront étudiées avec plus de détail dans les paragraphes suivants.

### ***b) PMMA***

Nous présentons les courbes d'écoulement du PMMA, Figure 3-23 et Figure 3-24, respectivement à 200 et 250 °C pour les deux séries de filières de diamètres 1 et 0,5 mm. Les résultats pour les filières de diamètre 0,3 mm ne sont pas présentés parce que la limite de la pression maximale du capteur de pression est atteinte rapidement et que les paliers de pressions sont inexploitable.

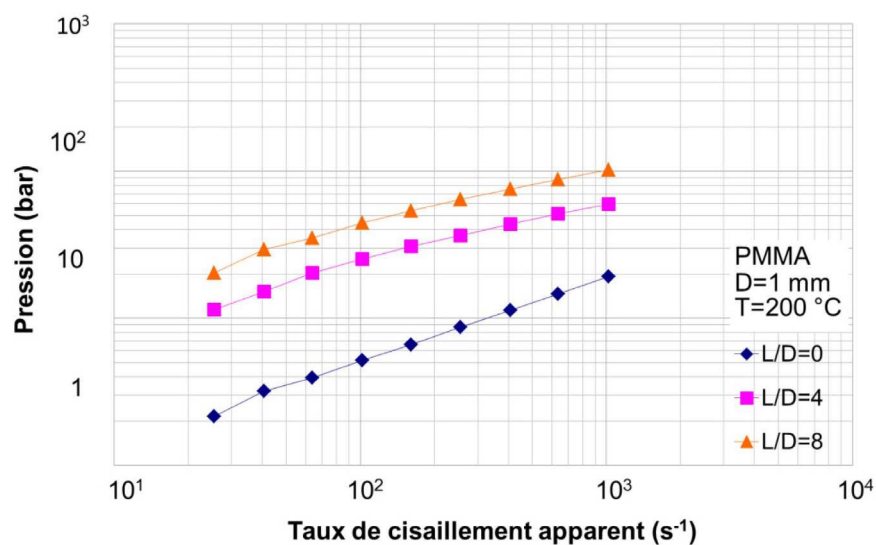


Figure 3-23 : Courbes d'écoulement dans les filières de diamètre 1 mm à 200 °C, PMMA.

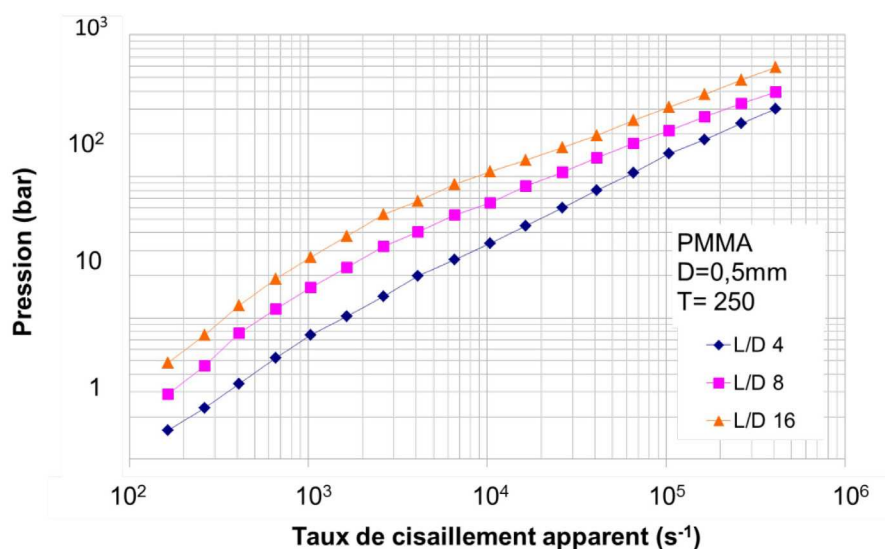


Figure 3-24 : Courbes d'écoulement dans la filière de diamètre 0,5 mm à 250 °C, PMMA.

La dépendance très importante de la viscosité avec la température pour le PMMA est bien illustrée par les courbes d'écoulement. Les pressions atteintes dans les filières de diamètre 1 mm à 200 °C sont plus importantes que celles obtenues avec les filières de diamètre 0,5 mm à 250 °C pour des valeurs de taux de cisaillement égales.

Nous pouvons observer dans certains cas (principalement avec le diamètre de 0,5 mm, figure 3-24) une légère discontinuité de la pente des courbes d'écoulement aux environs de  $10^4 s^{-1}$ . Toutefois, nous n'associons pas ce changement de courbure à un glissement à la paroi, car

d'une part, les défauts d'extrusions observés ne se réfèrent pas à ceux d'un contact glissant, d'autre part, dans la littérature, le PMMA n'est pas reconnu pour glisser.

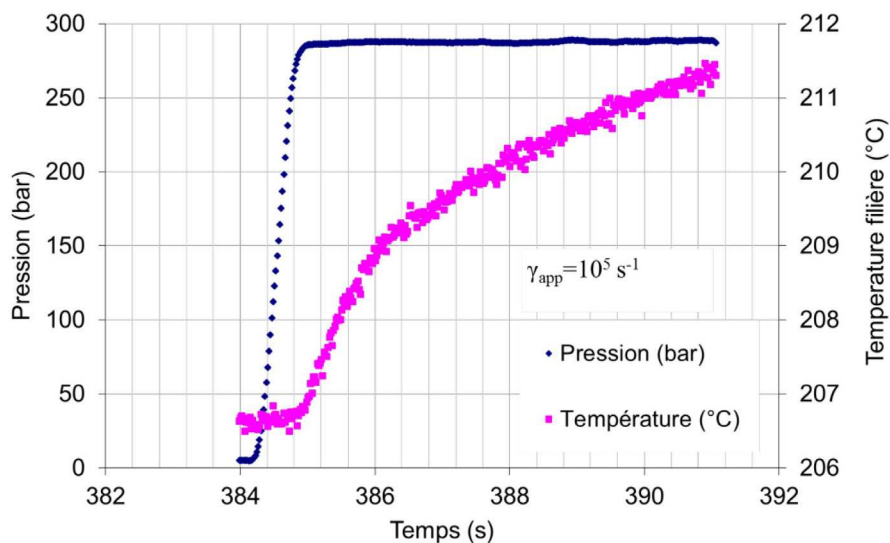
### 3.3.3.4 Mesures de température dans le capillaire

Comme les taux de cisaillement étudiés atteignent des valeurs très importantes, au-delà de  $10^4 \text{ s}^{-1}$  et jusqu'à plus de  $10^6 \text{ s}^{-1}$ , il est important de regarder de près l'évolution de la température au cours de l'écoulement. Nous utilisons pour cela des thermocouples, placés dans le métal des filières à 5 mm du polymère, et nous enregistrons l'évolution de la température lors de l'écoulement.

La Figure 3-25 montre l'évolution de la température dans la filière de diamètre 0,5 mm et de longueur 4 mm. Pour ce taux de cisaillement apparent de  $10^4 \text{ s}^{-1}$ , l'échauffement est d'environ

5 °C. L'échauffement adiabatique moyen donné par  $\Delta T = \frac{\Delta p}{\rho c}$  conduit avec  $\Delta p = 280 \text{ bar}$  à 14

°C. Le thermocouple ne ressent que partiellement cet échauffement pendant les 6 secondes que dure l'essai, ces valeurs sous-estiment la réalité de l'échauffement dans le polymère.



**Figure 3-25 : Courbes d'établissement de la pression et de l'évolution de la température lors d'un écoulement dans une filière de diamètre 0,5 mm et de longueur 4 mm, PEHD.**

La variation de la température entre le début et la fin de l'essai, notée  $\Delta T$ , dépend de la géométrie de la filière ainsi que des débits d'extrusion. L'échauffement est plus important pour les géométries les plus longues et avec les diamètres les plus petits.

Cette variation est représentée pour différents débits d'extrusion et pour la même géométrie de filière par la Figure 3-26. La valeur de  $\Delta T$  augmente avec le taux de cisaillement.

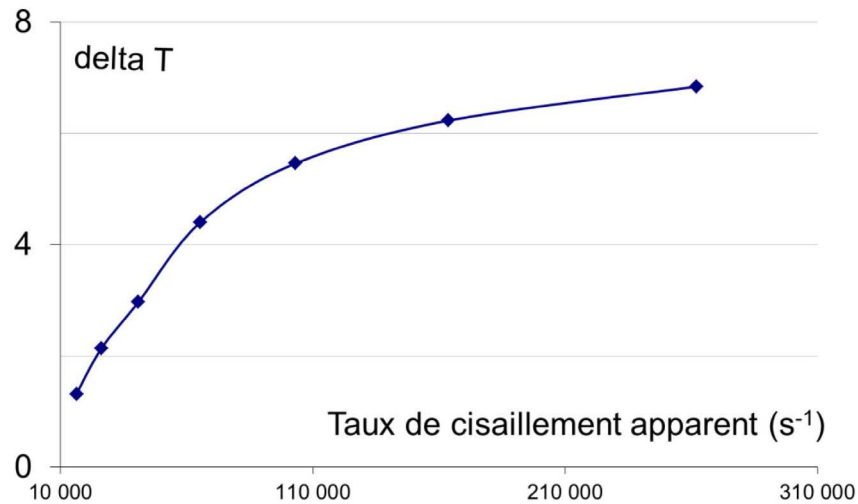


Figure 3-26 : Courbes de la variation de la température lors d'un écoulement dans une filière de diamètre 0,5 mm et de longueur 4 mm pour différents débits d'extrusion, PEHD.

### 3.3.4 Résultats PEHD

#### 3.3.4.1 Courbes de Bagley

Nous supposons que dans la 1<sup>ère</sup> partie des courbes d'écoulement les hypothèses suivantes sont satisfaites : écoulement isotherme, incompressible et établi, la viscosité ne dépend pas de la pression et le matériau colle à la paroi.

Nous mesurons la perte de charge dans le réservoir en amont de la filière et pour déterminer cette grandeur dans la filière, il nous faut appliquer les corrections de Bagley (1957). Pour cela, nous utilisons pour un même diamètre de filière trois longueurs différentes.

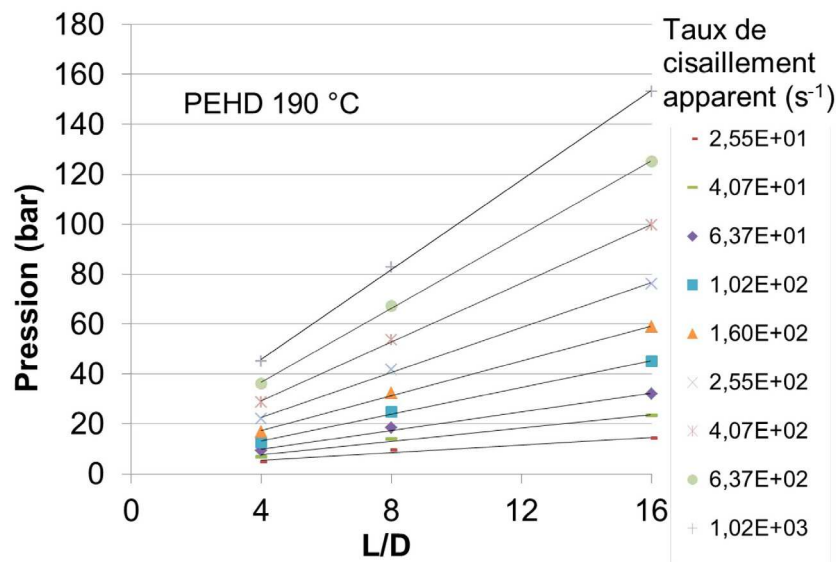
La perte de charge mesurée,  $\Delta P_{mes}$ , est la somme de la perte de charge en entrée  $\Delta P_e$  entre le capteur et l'entrée de la filière et de la perte de charge dans le capillaire  $\Delta P_r$ . Nous pouvons introduire la contrainte à la paroi  $\tau_p$  et les paramètres de la géométrie de la filière pour obtenir :

$$\tau_p = \frac{R \cdot \Delta P_r}{2L} = \frac{D \cdot \Delta P_r}{4L}$$

$$\Delta P_{mes} = \Delta P_r + \Delta P_e = \frac{4L}{D} \tau_p + \Delta P_e$$

Ainsi, pour chaque débit, nous traçons les pertes de charge mesurées en fonction des rapports  $L/D$ . Si les conditions d'écoulement de Bagley sont correctes, nous obtenons des droites dont la pente nous renseigne sur la valeur de la contrainte à la paroi et dont l'ordonnée à l'origine nous donne la valeur de la pression d'entrée  $\Delta P_e$ .

La Figure 3-27 présente les courbes de Bagley du PEHD à 190 °C pour les écoulements dans les filières de diamètre 1 mm, à des taux de cisaillement inférieurs à  $2.10^3 \text{ s}^{-1}$ , qui correspond au changement de pente sur la figure 3-20. Les points sont bien alignés, l'utilisation de la méthode de Bagley est légitime.



**Figure 3-27 : Courbes de Bagley pour les faibles taux de cisaillement, diamètre de 1 mm, température de 190 °C, PEHD.**

Nous présentons également l'évolution de la perte de charge dans le convergent déterminée à partir des courbes de Bagley en fonction du taux de cisaillement que nous superposons aux pertes de charge dans le capillaire, Figure 3-28. Pour les faibles taux de cisaillement, la pression est faible et la correction de la perte de charge dans le convergent n'évolue pas beaucoup, à partir d'un taux de cisaillement apparent de  $10^2 \text{ s}^{-1}$ , la courbe de correction de la pression d'entrée évolue avec une pente similaire à celles des courbes de perte de charge dans le capillaire.



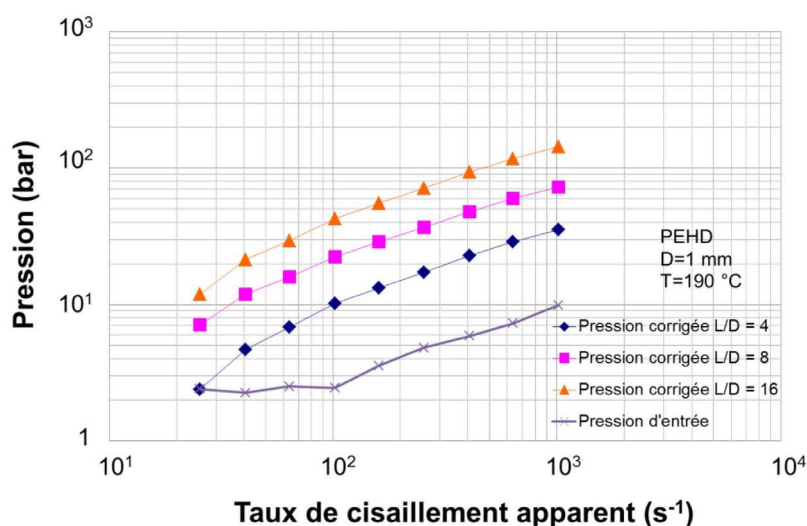


Figure 3-28 : Pertes de charge dans le convergent et dans le capillaire, diamètre de 1 mm, température de 190 °C, PEHD.

Sur la Figure 3-29, à 205 °C avec la filière de 0,5 mm de diamètre, les taux de cisailment apparents sont au-delà de la rupture de pente remarquée sur la Figure 3-21, dans la zone de défauts d'extrusion. La linéarité des courbes est encore de bonne qualité, sans être parfaite. Notons aussi que la correction de Bagley est toujours positive, ce qui démontre la qualité des mesures. Nous remarquons néanmoins que les droites sont légèrement parallèles, en particulier aux forts taux de cisailment. Ceci peut être expliqué par l'effet du glissement à la paroi.

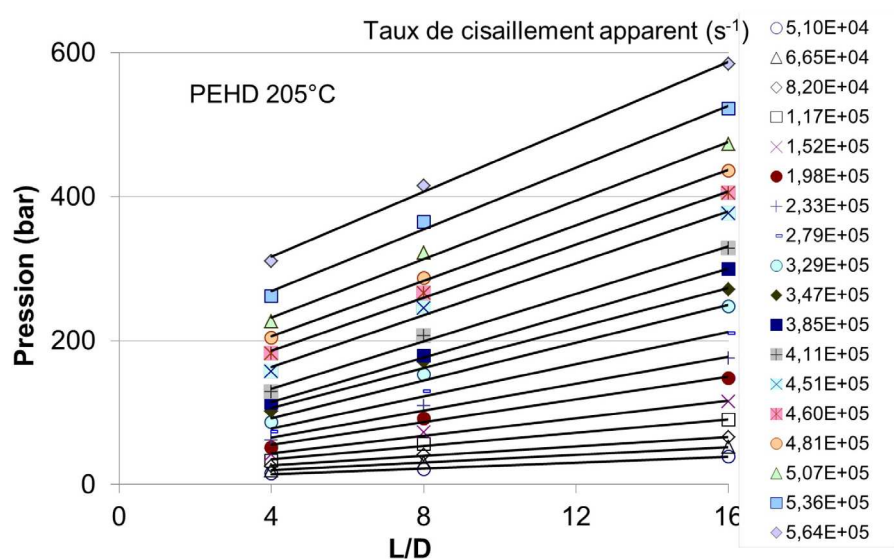


Figure 3-29 : Courbes de Bagley pour les hauts taux de cisailment, filières de diamètre 0,5 mm, température 205 °C, PEHD.

La Figure 3-30 montre l'évolution de la perte de charge dans le convergent superposée avec les pertes de charge dans le capillaire (donc après correction de Bagley). L'évolution régulière de la perte de charge dans le convergent rend compte de la qualité correcte des mesures. Nous remarquons qu'à partir des forts taux de cisaillement l'évolution de la perte de charge dans le convergent est plus rapide que celle des pressions dans le capillaire. Les évolutions de perte de charge dans le capillaire présentent une inflexion à partir des grandes vitesses de déformation (trait discontinu sur la figure). La différence d'évolution entre la perte de charge dans le capillaire et la perte de charge dans le convergent peut être reliée au comportement en élongation dans le convergent, mais aussi au glissement à la paroi, à la thermodépendance, voire à l'inertie qui n'est pas négligeable à ces vitesses.

Nous décidons d'appliquer les corrections de Bagley pour la suite de l'exploitation des résultats, même si les hypothèses conventionnelles ne sont plus satisfaites.

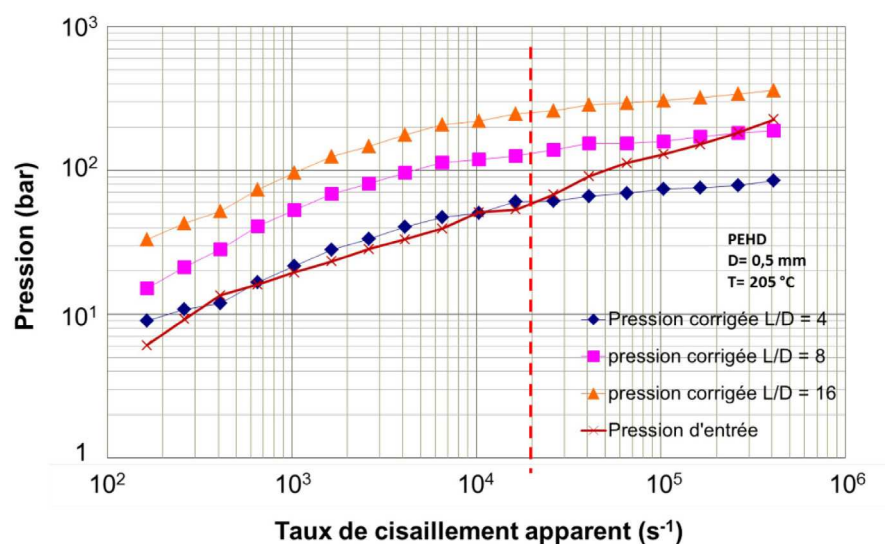


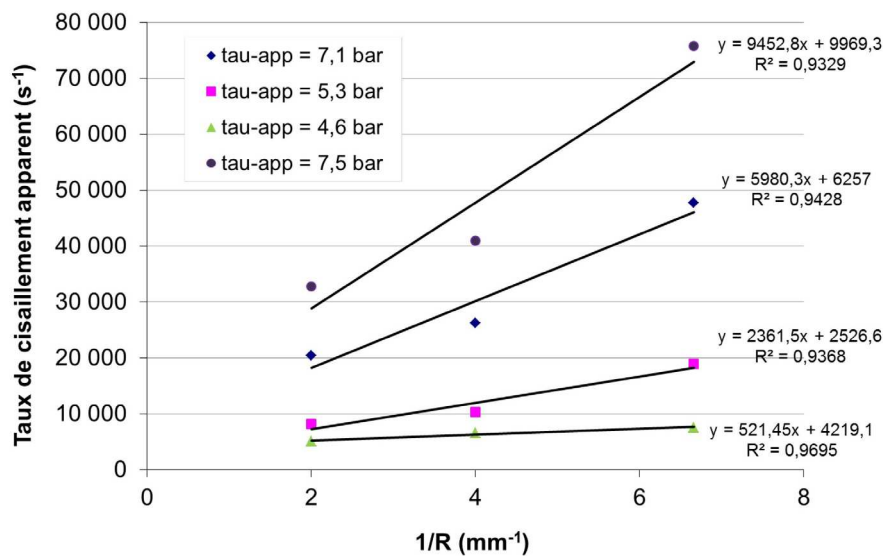
Figure 3-30 : Pertes de charge dans le convergent et dans le capillaire, diamètre de 0,5 mm, température 205 °C, PEHD.

### 3.3.4.2 Analyse du glissement

Nous essayons de quantifier le glissement dans le cas du PEHD. Nous exploitons les filières de différents diamètres pour calculer la vitesse de glissement selon la méthode de Mooney, où le taux de cisaillement apparent est défini en fonction de la vitesse de glissement et est donné par l'équation ci-dessous. Pour cela, nous traçons les courbes du taux de cisaillement apparent

en fonction de l'inverse du rayon de la filière  $R$  pour différentes valeurs de la contrainte à la paroi, Figure 3-31.

$$\dot{\gamma}_{app} = \frac{4V_g(\tau_p)}{R} + \frac{4}{T_p^3} \int_0^{\tau_p} \tau^2 \dot{\gamma}(\tau) d\tau = \frac{4V_g(\tau_p)}{R} + \frac{(\tau_p)^2}{g_p} \quad \text{Équation 3-2}$$



**Figure 3-31 : Détermination du glissement par la méthode de Mooney en utilisant trois diamètres de filières (1, 0,5 et 0,3 mm avec L/D = 8) à 205°C, PEHD**

Les courbes obtenues ne sont pas des droites, nous essayons toutefois d'exploiter les pentes des courbes de tendance linéaire décrivant les points obtenus. Nous retrouvons pour chaque taux apparent une vitesse de glissement qui reste inférieure à la vitesse moyenne, donc admissible. L'évolution dans un schéma bilogarithmique de la contrainte à la paroi avec la vitesse de glissement est représentée à la Figure 3-32. Une loi de glissement classiquement utilisée est la loi de Norton :

$$\tau_p = \alpha \cdot V_g^n$$

$$n$$

$$\log \tau_p = \log \alpha + n \log V_g$$

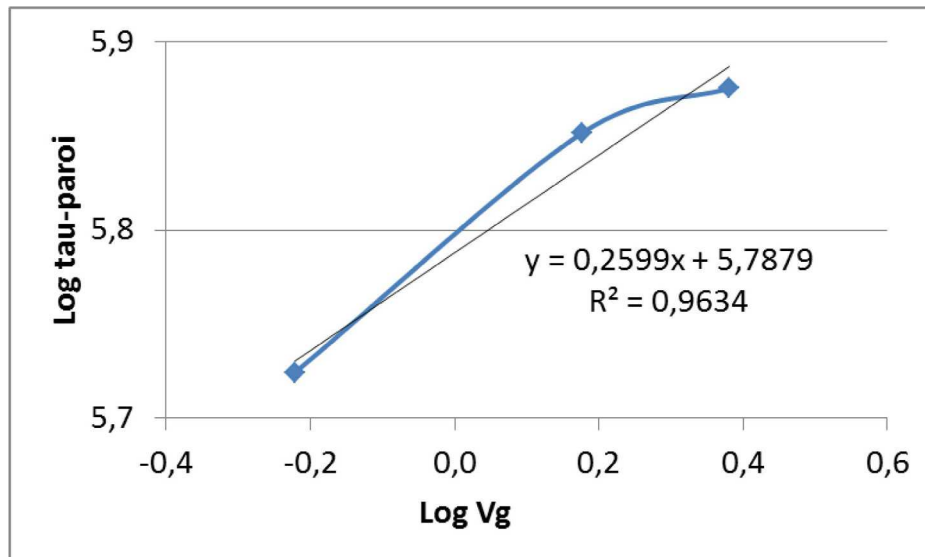


Figure 3-32 : Détermination des paramètres de glissement suivant la loi de Norton

Nous constatons sur la Figure 3-32 que les points expérimentaux ne suivent qu'approximativement cette loi. Nous trouvons les paramètres suivants :  $\alpha = 5,7 \cdot 10^5 \text{ Pa.s}^n \cdot \text{m}^{-n}$ , et  $n = 0,26$ .

Ces valeurs sont du même ordre de grandeur que celles de la littérature.

En effet, nous rappelons ci-dessous la loi de glissement de Hatzikiriakos et Dealy (2009) présentée au chapitre 2.

$$V_g = \frac{f_0 f_1}{1 + \frac{f_0}{\tau_p}} \left( \frac{E + \frac{f_2}{\tau_p}}{RT} \right)^{\frac{\tau_p}{I}} \left( \frac{1}{1 + \frac{f_2}{\tau_p}} \right)^{\frac{1}{4}}$$

Nous ramenons cette équation à celle de la loi de Norton et nous calculons les constantes  $n$  et  $\alpha$ . Pour le PEHD, ils trouvent  $\alpha = 7,42 \cdot 10^5 \text{ Pa.s}^n \cdot \text{m}^{-n}$  et  $n = 0,232$ . Ces valeurs sont très proches de ce que nous avons pu déterminer expérimentalement. Ansari et al. (2012) utilisent directement une loi de Norton thermodépendante pour un PEHD et ils trouvent  $\alpha = 3,2 \cdot 10^5 \text{ Pa.s}^n \cdot \text{m}^{-n}$  (pour la température de référence de 190 °C) et  $n = 0,17$ .

Remarque : Nous avons essayé d'appliquer les méthodes qui découlent de celle de Mooney, à savoir celles de Wiegrefe et de Geiger. Dans le premier cas, nous traçons les courbes du taux de cisaillement apparent en fonction de l'inverse du rayon au carré et dans le second cas, nous traçons les courbes du logarithme du taux de cisaillement apparent en fonction de l'inverse du rayon. Le but de ces méthodes est d'éviter les ordonnées négatives à l'origine. Les résultats de ces tracés ne donnent pas des droites et la détermination de la vitesse de glissement s'avère donc sans succès.

Nous avons aussi cherché à déterminer le glissement par référence à une courbe sans glissement. La courbe d'écoulement du PEHD présente deux branches qui ne sont pas discontinues, mais de pentes différentes.

Dans un premier temps, nous extrapolons la courbe d'écoulement (contrainte à la paroi corrigée en fonction du taux de cisaillement corrigé) à faibles taux de cisaillement, avant l'apparition de la zone bouchon vers les hauts taux de cisaillement. La prolongation se fait selon une loi d'écoulement purement visqueuse (suivant la loi Carreau Yasuda présentée ultérieurement pour le lissage des courbes à faibles taux de cisaillement). Cette courbe est notée «  $\tau_p$  calculé » sur la Figure 3-33.

Nous comparons ensuite cette prolongation avec la deuxième branche de la courbe d'écoulement réelle notée «  $\tau_p$  corrigé ».

La vitesse de glissement est alors calculée par l'équation suivante :

$$\dot{\gamma}_{app}(glis.) = \dot{\gamma}_{app}(visq.) + \frac{4V_g}{R} \quad \text{Équation 3-3}$$

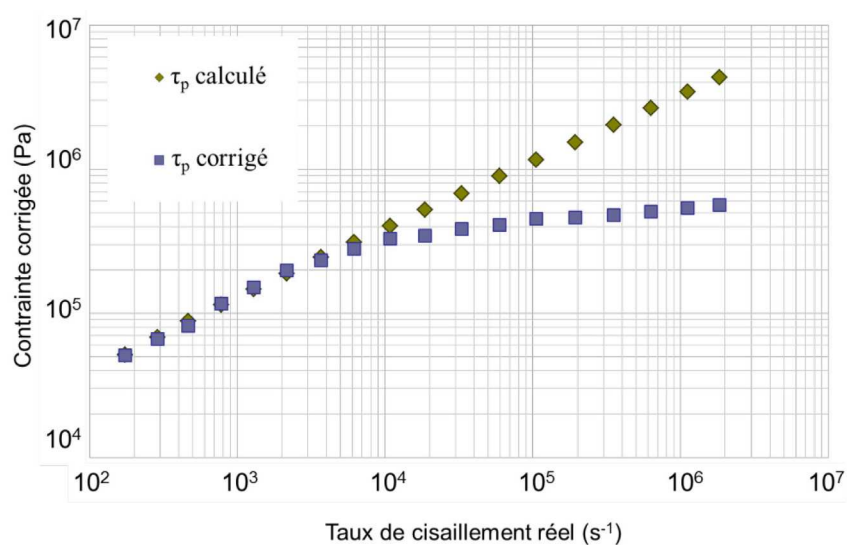


Figure 3-33 : Courbe de mise en évidence du glissement, filière de diamètre 0,5 mm à 205 °C, PEHD.

Pour un taux de cisaillement à la paroi de l'ordre de  $4.10^5$  Pa, la vitesse de glissement calculée est comprise entre 22 et 48 m/s. La vitesse moyenne dans la filière étant d'environ 10 m/s, et comme la vitesse de glissement ne peut pas être plus importante que la vitesse d'écoulement, ces valeurs ne sont pas physiquement justifiables. C'est que dans le cas de la prolongation de la première branche, nous ne prenons pas en compte plusieurs phénomènes qui interviennent dans le changement de la pente autre que le glissement (piezodépendance, échauffement, compressibilité...).

La quantification du glissement s'avère peu fiable, nous choisissons dans la suite de l'étude expérimentale de ne pas corriger les taux de cisaillement par une valeur de la vitesse du glissement pour toute la plage de taux de cisaillement.

### 3.3.4.3 Viscosité

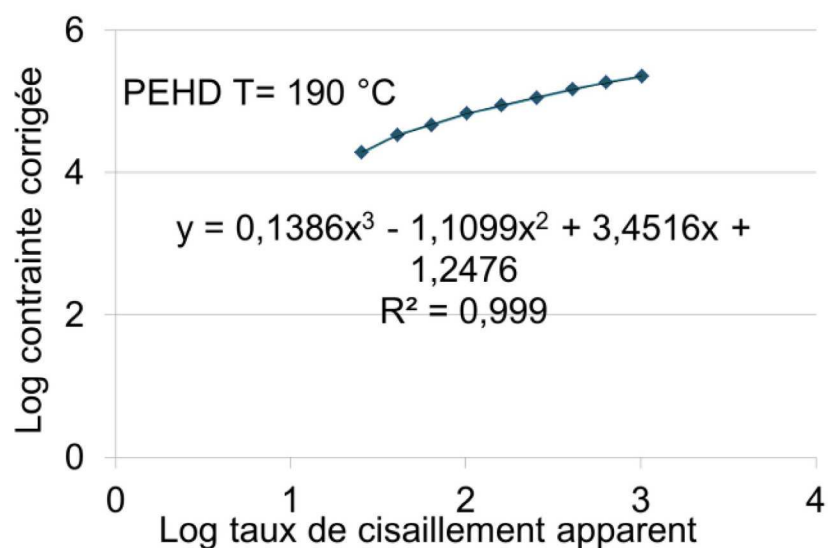
Une fois la contrainte à la paroi déterminée par les corrections de Bagley, nous pouvons déterminer le taux de cisaillement réel, ou pseudoplastique par la méthode de Rabinowitsch (1929).

Nous cherchons à déterminer l'indice de pseudoplasticité pour pouvoir corriger la valeur du taux de cisaillement. Pour cela, nous traçons le logarithme de la contrainte à la paroi en fonction du logarithme du taux de cisaillement apparent et nous approchons la courbe par un polynôme de degré trois. La dérivée donne l'indice de pseudoplasticité local, dont nous déduisons le taux de cisaillement réel selon les équations suivantes :

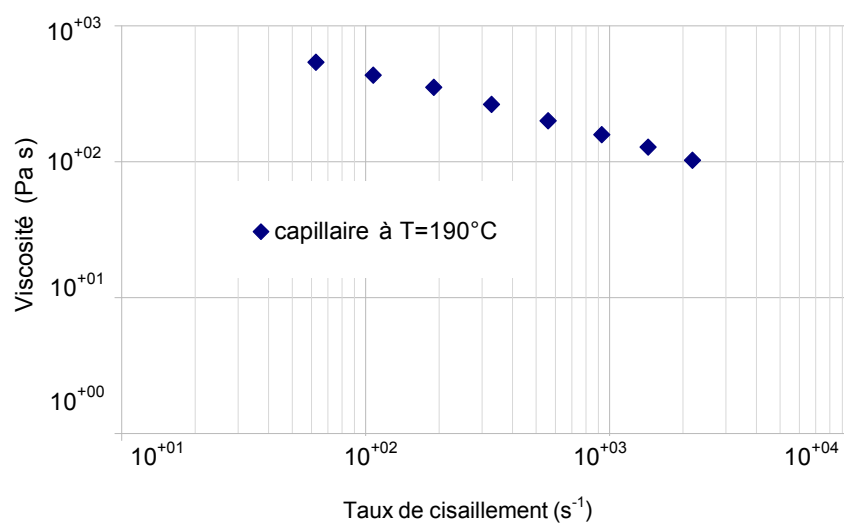
$$m = \frac{\partial \log \tau_p}{\partial \log \dot{\gamma}_{ap}} \quad \text{Équation 3-4}$$

$$\dot{\gamma}_{reel} = \frac{3m+1}{4m} \dot{\gamma}_{ap} \quad \text{Équation 3-5}$$

Nous calculons enfin la viscosité que nous traçons en fonction du taux de cisaillement réel. La Figure 3-34 et la Figure 3-35 représentent respectivement les corrections de Rabinowitsch et la courbe de viscosité du PEHD à 190 °C pour les faibles taux de cisaillement dans les filières de diamètre 1 mm.



**Figure 3-34 : Courbe des corrections de Rabinowitsch à 190 °C, filière de diamètre 1 mm, pour les faibles taux de cisaillement, PEHD.**



**Figure 3-35 : Courbe d'évolution de la viscosité à 190 °C, filière de diamètre 1 mm, pour les faibles taux de cisaillement, PEHD.**

Nous supposons que les corrections de Rabinowitsch pour le calcul du taux de cisaillement réel restent valables pour les écoulements dans les filières de plus faibles diamètres à haut taux de cisaillement.

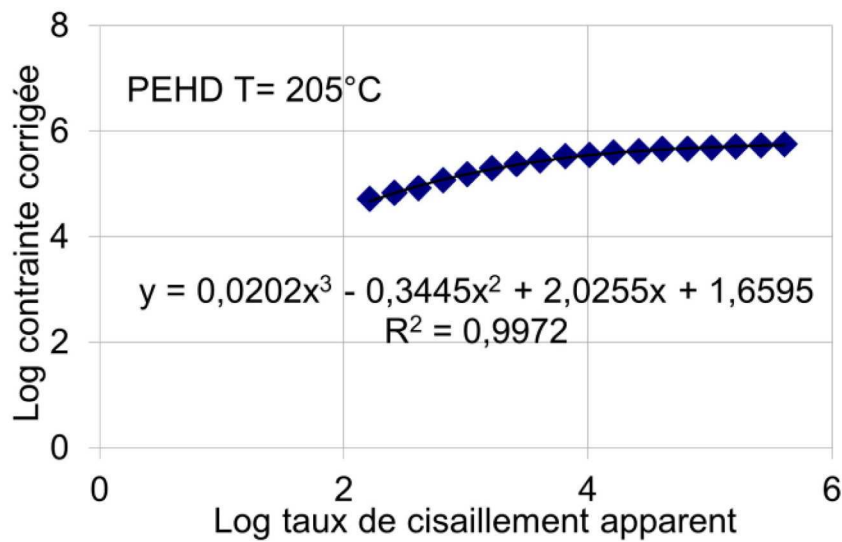


Figure 3-36 : Courbe des corrections de Rabinowitsch à 205 °C, filière de diamètre 0,5 mm, PEHD.

La courbe de viscosité obtenue pour le PEHD atteint des taux de cisaillement de l'ordre de  $10^6 \text{ s}^{-1}$ , Figure 3-37.

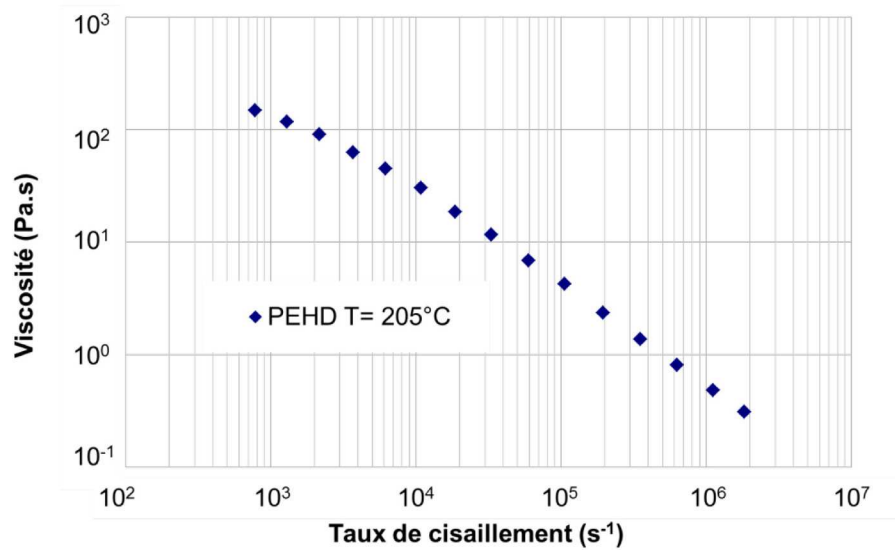


Figure 3-37 : Courbe d'évolution de la viscosité à 205 °C, filière de diamètre 0,5 mm, pour les hauts taux de cisaillement, PEHD.

Nous exploitons toutes les données de viscosité obtenues grâce à l'utilisation des trois diamètres de filières. Nous superposons ces courbes en utilisant le facteur de glissement  $a_T$  défini en rhéologie dynamique à une température de 205 °C, Figure 3-38. Les courbes ne sont



pas exactement superposées. Ceci peut être dû au fait que le dépouillement a été fait avec les hypothèses classiques, qui sont contestables lorsque le taux de cisaillement est important. L'extrémité de la courbe en loi-puissance ne présente pas un second plateau comme décrit dans la littérature. Les viscosités obtenues à hauts taux de cisaillement sont de l'ordre de quelques dixièmes de Pa.s.

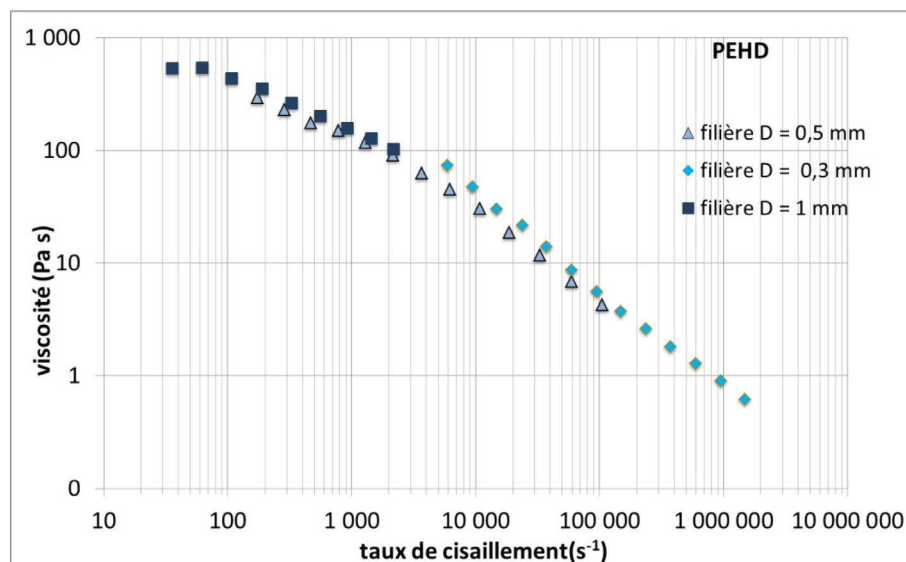


Figure 3-38 : Superposition des courbes de l'évolution de la viscosité en fonction du taux de cisaillement pour les trois diamètres 1 ; 0,5 et 0,3 mm, à une température de référence de 205 °C, PEHD.

### 3.3.5 Résultats PMMA

#### 3.3.5.1 Courbes de Bagley

Les courbes Bagley et les courbes de perte de charge dans le capillaire superposées à celle de la perte de charge dans le convergent à différents débits, à 200 °C, dans les filières de diamètre 1 mm sont présentées respectivement par la Figure 3-39 et la Figure 3-40. Celles obtenues pour les écoulements, à hauts taux de cisaillement, dans les filières de diamètre 0,5 mm avec une température de 250 °C sont présentées par la Figure 3-41 et la Figure 3-42. Dans le graphe de Bagley, les points sont en général correctement alignés, surtout pour la filière de 1 mm, et les pressions d'entrées toujours positives et évoluant de façon physique avec le débit.

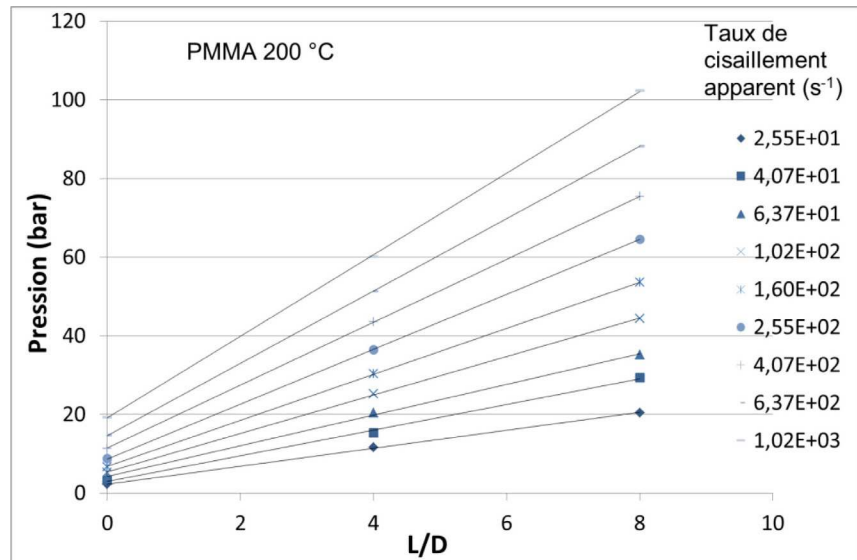


Figure 3-39 : Courbes de Bagley, diamètre 1 mm, température 200 °C, PMMA.

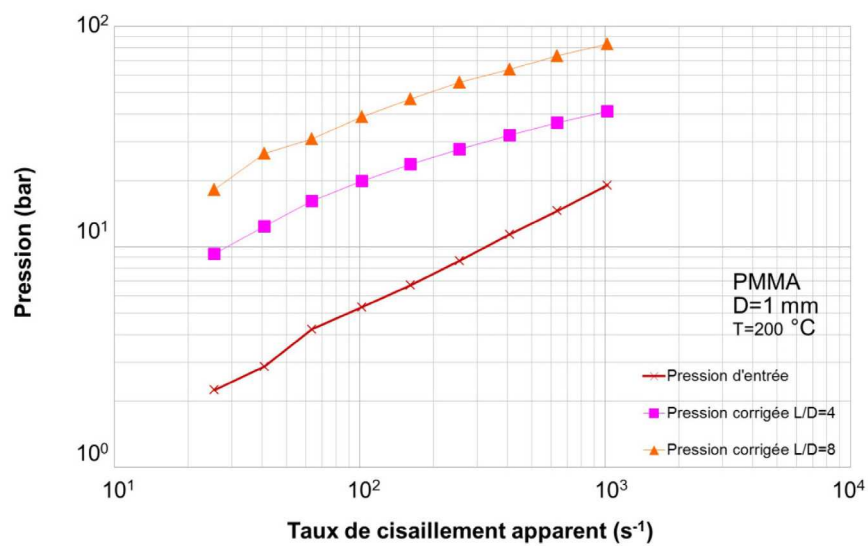


Figure 3-40 : Pertes de charge dans le convergent et dans le capillaire, diamètre filières de 1 mm, température 200 °C, PMMA.

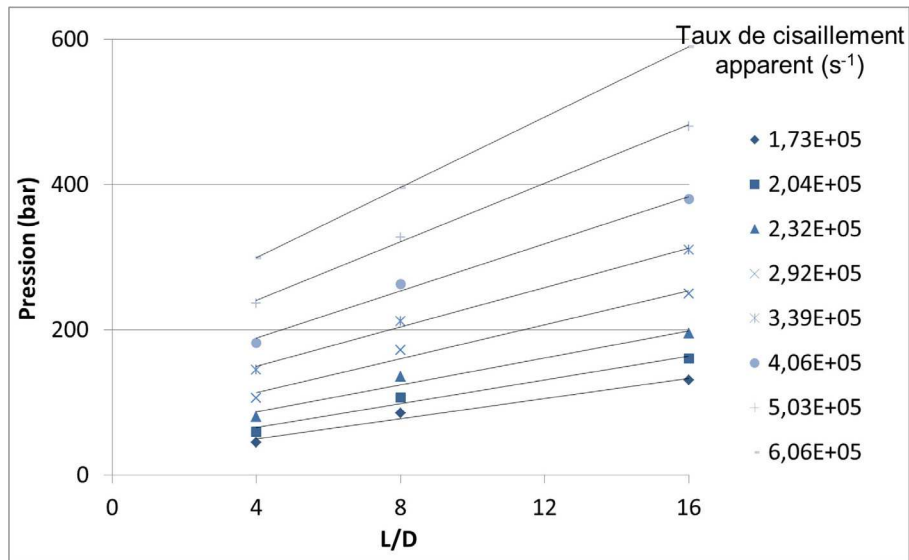


Figure 3-41 : Courbes de Bagley, diamètre 0,5 mm, température 250 °C, PMMA.

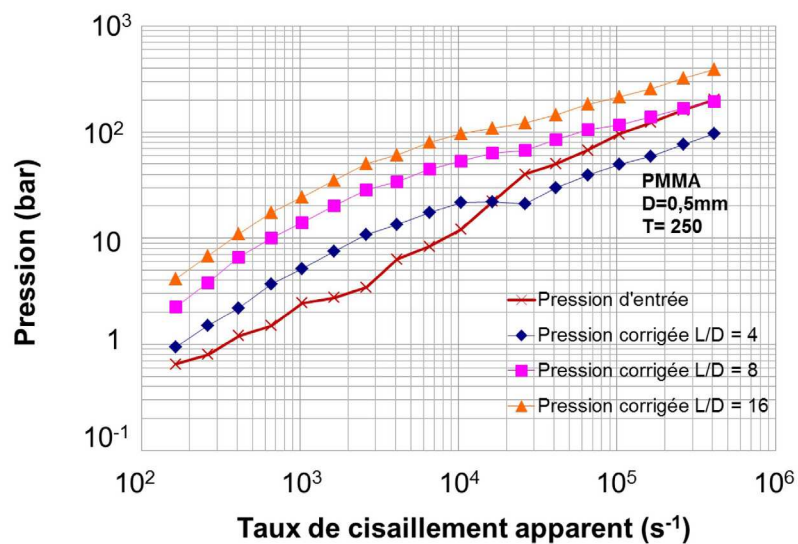


Figure 3-42 : Pertes de charge dans le convergent et dans le capillaire, diamètre de 0,5 mm, température 250 °C, PMMA.

Sur la Figure 3-42 nous remarquons que l'évolution de la perte de charge dans le convergent est similaire à la perte de charge dans le capillaire. Nous remarquons aussi une variation de pente pour les deux types de courbe vers  $2.10^4 \text{ s}^{-1}$ .

### 3.3.5.2 Viscosité

Nous effectuons les corrections de Rabinowitsch selon les formules décrites dans le paragraphe 3.3.4.3 d'abord pour les filières de diamètre 1 mm. La Figure 3-43 présente le

tracé du logarithme de la contrainte à la paroi en fonction du log du taux de cisaillement apparent et le lissage de la courbe par un polynôme de degré trois. La courbe de viscosité en fonction du taux de cisaillement réel est présentée par la courbe de la Figure 3-44.

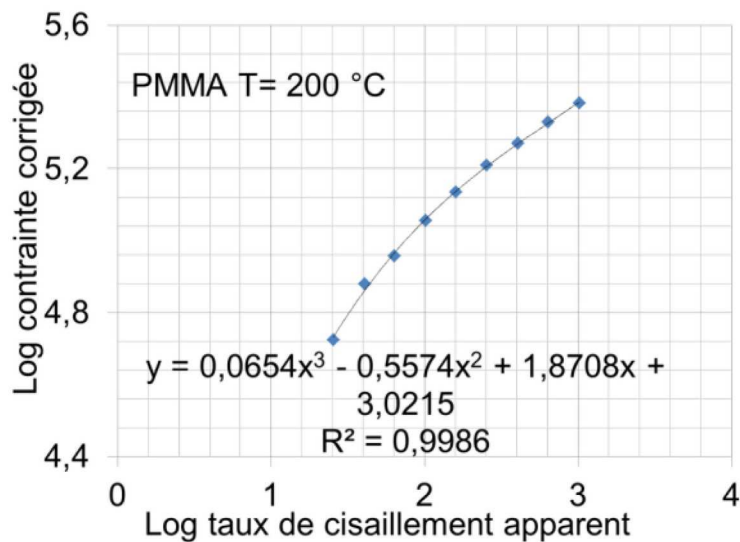


Figure 3-43 : Courbe des corrections de Rabinowitsch à 200 °C, diamètre 1 mm, PMMA.

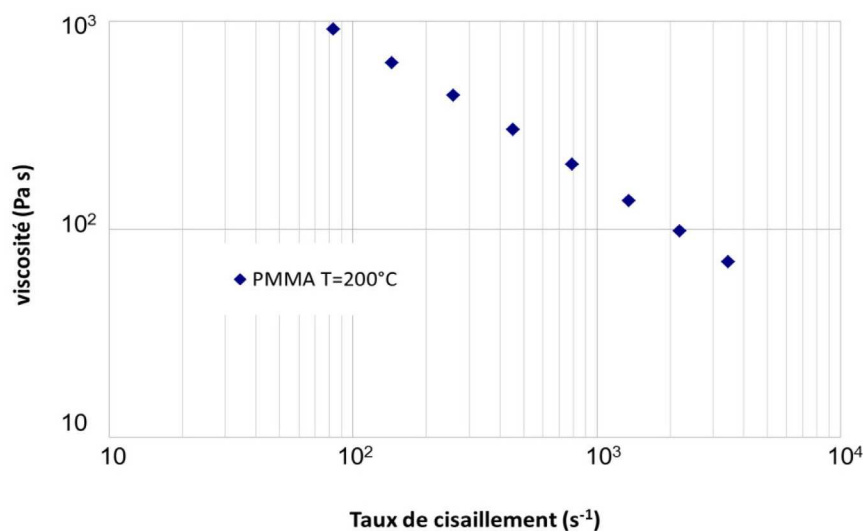


Figure 3-44 : Courbe d'évolution de la viscosité en fonction du taux de cisaillement à 200 °C, diamètre 1 mm, PMMA.

Nous présentons de la même façon la courbe des corrections de Rabinowitsch, Figure 3-45, et la courbe de viscosité en fonction du taux de cisaillement corrigé, Figure 3-46, pour les filières de diamètre 0,5 mm à 250 °C.

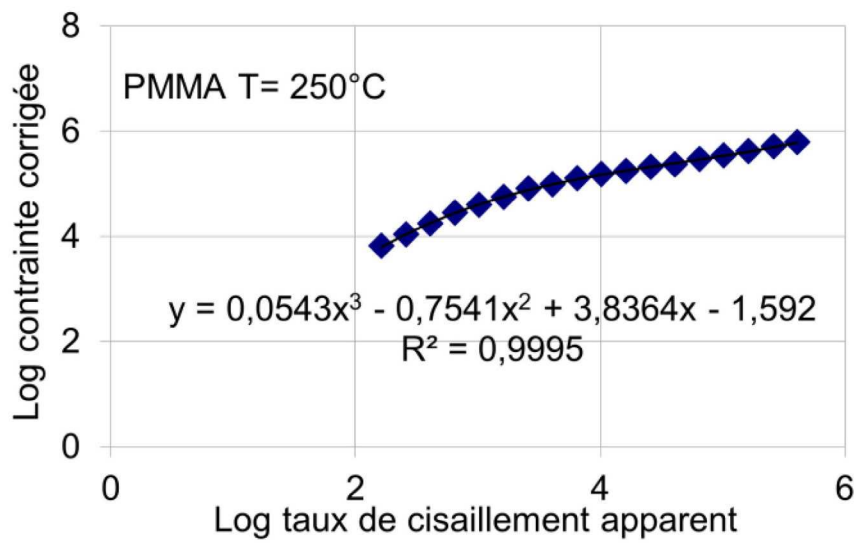


Figure 3-45 : Courbe des corrections de Rabinowitsch à 250 °C, diamètre 0,5 mm, PMMA.

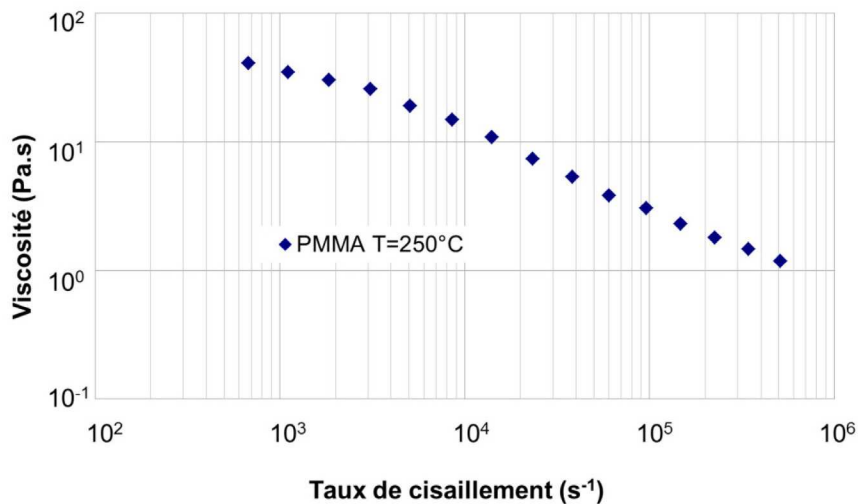
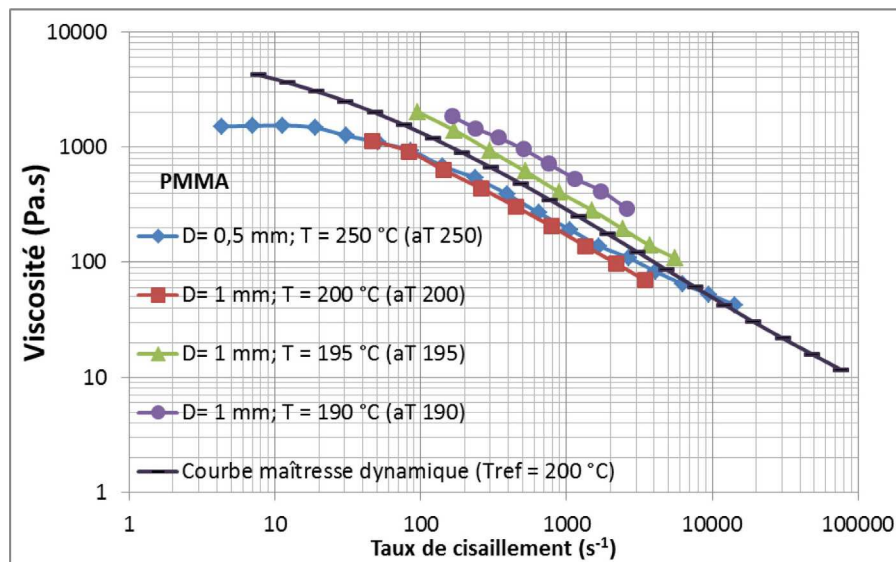


Figure 3-46 : Courbe d'évolution de la viscosité en fonction du taux de cisaillement à 250 °C, diamètre de 0,5 mm, PMMA.

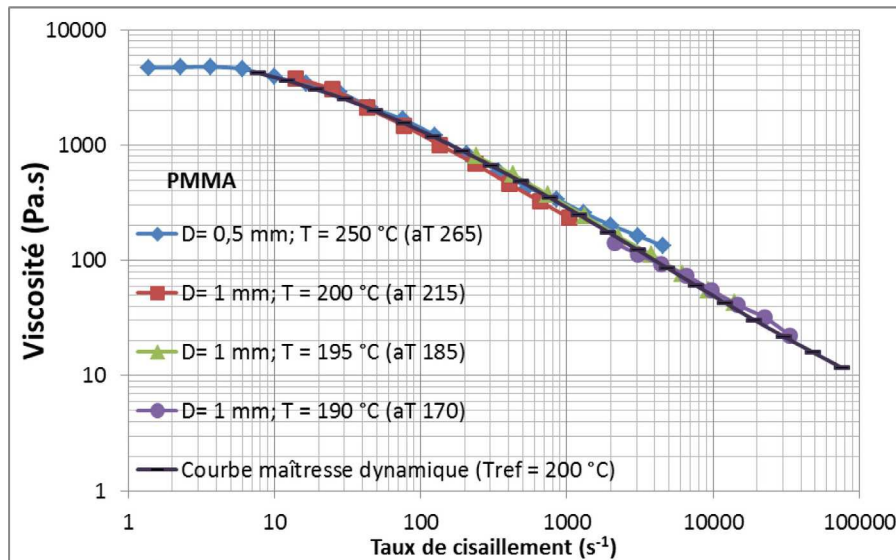
Nous atteignons des taux de cisaillement, de l'ordre de  $5.10^5 \text{ s}^{-1}$ . Comme le polymère est extrudé à haute température, les valeurs de la viscosité sont faibles. Nous remarquons sur la Figure 3-46 une légère inflexion à partir de  $6.10^4 \text{ s}^{-1}$  dans la pente de la courbe de viscosité. A ces taux de cisaillement, les points expérimentaux sont moins fiables, compte de tenu des écoulements chaotiques en sortie de filière, bien que les paliers de pression soient relativement correctes.

Nous superposons, Figure 3-48, les courbes de viscosité des différents essais (réalisés à 190, 195 et 200 °C avec les filières de diamètre 1 mm, et 205 °C avec les filières de 0,5 mm) ramenés à 200 °C à l'aide du facteur de glissement  $a_T$  obtenu en rhéologie dynamique. Nous superposons également une partie de la courbe maîtresse à 200 °C obtenue en rhéométrie dynamique. Nous remarquons des écarts entre les différentes courbes, et nous soupçonnons une erreur dans les températures relevées sur le Rhéoplast.

Pour valider cette hypothèse, nous déterminons la température à laquelle les essais auraient dû se dérouler (notée T fictive), pour qu'après glissement à la température de 200 °C, les courbes se superposent à celle de la rhéologie dynamique (Figure 3-48).



**Figure 3-47 : Superposition des courbes de l'évolution de la viscosité en fonction du taux de cisaillement pour différents essais à une température de référence de 200 °C, PMMA.**



**Figure 3-48 : Superposition des courbes de l'évolution de la viscosité en fonction du taux de cisaillement pour différents essais décalées à une température de référence de 200 °C, PMMA.**

Nous obtenons le résultat suivant :

	D = 0,5 mm T = 250 °C	D = 1 mm T = 190 °C	D = 1 mm T = 195 °C	D = 1 mm T = 200 °C
T fictive	265 °C	170 °C	185 °C	215 °C

Dans deux essais, la température fictive est 15 °C plus haute que la température mesurée pendant l'essai, et pour deux essais, elle est 10 °C et 20 °C plus basse. Quoique probable, il est difficile de conclure sur la validité l'hypothèse selon laquelle la température réelle de l'essai est responsable des écarts constatés sur la Figure 3-48. Il ne faut pas oublier que les hypothèses classiques de la rhéologie capillaire (écoulement isotherme, à pression modérée, sans glissement) ne sont pas toujours satisfaites. De plus des instabilités d'écoulement peuvent générer un écoulement complexe dans le capillaire. Le rôle respectif de ces différents phénomènes est encore difficile à quantifier.

### 3.4 Données rhéologiques

Nous réalisons une superposition de la courbe de viscosité obtenue par le Rhéoplast et la courbe maîtresse obtenue avec l'ARES. Par la suite, nous lisons la courbe de viscosité par un

modèle. Le résultat de ce lissage nous renseigne sur les données rhéologiques propres à chacun des deux polymères.

### 3.4.1 Superposition Rhéoplast - ARES

Nous réalisons une confrontation entre les résultats des rhéomètres capillaire et dynamique. La transformation de Cox-Merz considère que la viscosité complexe fonction de la pulsation est égale à la viscosité fonction du taux de cisaillement.

$$|\eta^*(\omega)| = \eta(\dot{\gamma})$$

#### a) PEHD

La Figure 3-49 montre les courbes superposées obtenues avec les deux rhéomètres à 190 °C. L'accord est excellent et les courbes des viscosités dynamiques et capillaires se succèdent. Nous obtenons ainsi une courbe de viscosité qui balaye un large domaine de taux de cisaillement, de  $10^{-1}$  à  $10^6 \text{ s}^{-1}$ .

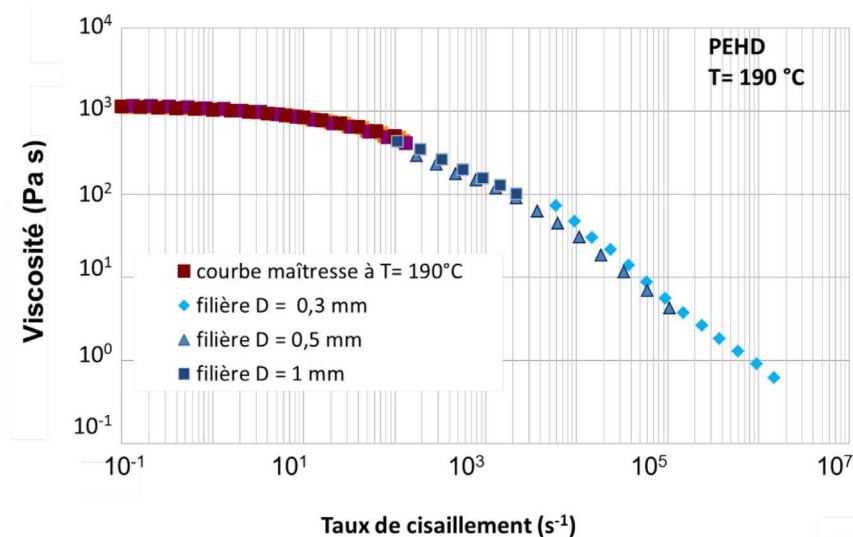


Figure 3-49 : Courbe d'évolution de la viscosité à 190 °C, PEHD.

#### b) PMMA

Dans le cas du PMMA, les courbes de viscosité en rhéométrie capillaire réalisées à différentes températures ne se superposent pas très bien entre elles moyennant le glissement en température selon le facteur de la loi de WLF déterminée en rhéométrie dynamique. Nous choisissons de réaliser les glissements en tenant compte des températures fictives,



déterminées précédemment, même si celles-ci n'évoluent pas de façon cohérentes. Le résultat de la superposition est donné par la Figure 3-50. A noter que les hauts taux de cisaillement, de  $10^5 \text{ s}^{-1}$ , sont atteints en rhéométrie dynamique. La courbe de viscosité capillaire se situe dans un domaine intermédiaire de taux de cisaillement par rapport à la courbe de rhéologie dynamique qui décrit un plus large domaine de vitesse de déformation.

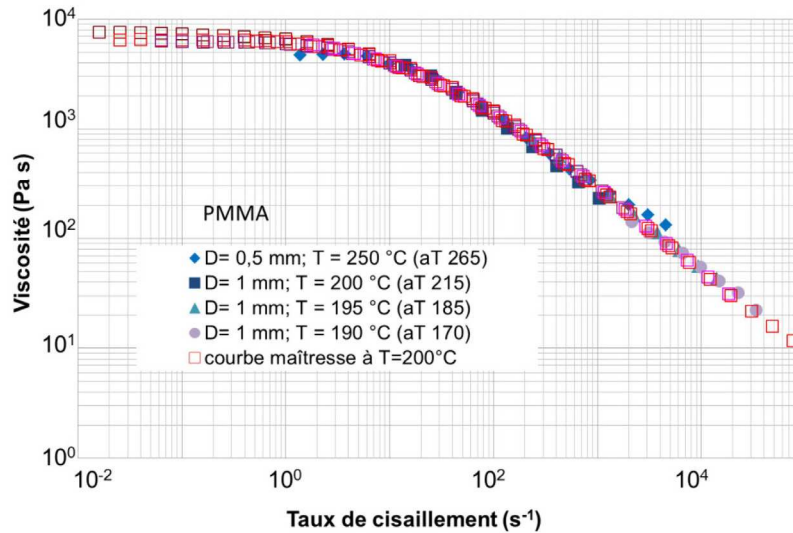


Figure 3-50 : Courbe d'évolution de la viscosité à 200 °C, PMMA.

### 3.4.2 Lissage de Carreau-Yasuda

Nous modélisons les courbes de viscosité à l'aide d'une loi Carreau-Yasuda. Cette loi décrit bien le plateau newtonien aux faibles taux de cisaillement et elle dégénère en une loi-puissance d'Ostwald-De Waele pour les fort taux de cisaillement.

$$\eta(\dot{\gamma}) = \eta_0 \left( 1 + \lambda^a \dot{\gamma}^a \right)^{\frac{1-n}{a}} \quad \text{Équation 3-6}$$

Les paramètres de l'équation de Carreau-Yasuda sont les suivants :  $\eta_0(T_{ref})$  est la viscosité

du palier newtonien à la température de référence (et à pression atmosphérique),  $\lambda$  est un temps caractéristique qui permet de fixer la région de taux de cisaillement dans laquelle nous passons du plateau newtonien à la partie en loi puissance (la transition a lieu pour un taux de cisaillement de l'ordre de  $1/\lambda$ ), et  $a$  un paramètre qui permet de rendre la transition plus ou moins rapide entre le plateau newtonien et la partie en loi-puissance (plus  $a$  est grand, plus la transition est brusque).

### a) PEHD

Dans le cas du PEHD, il est possible d'avoir deux lissages différents dont l'un respecte au mieux la courbe aux faibles taux de cisaillement, CY1, Figure 3-51, et l'autre prend en compte la partie de la courbe aux hauts taux de cisaillement CY2, Figure 3-52. Si nous superposons les deux lissages sur la courbe de viscosité, Figure 3-53, nous voyons bien que le premier lissage surestime la valeur de la viscosité pour les hauts taux de cisaillement. Nous remarquons aussi que la divergence entre les deux lissages intervient autour de  $6,2 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$ , quand les défauts d'extrusions deviennent chaotiques, Figure 3-19. Les propriétés rhéologiques sont également différentes.

Le fait que le lissage CY2 donne une viscosité inférieure peut être relié au glissement. Le lissage CY1 devrait donc être plus fiable, mais si nous voulons l'utiliser pour simuler l'écoulement dans un moule de microinjection, il faudra extrapoler très largement en dehors du domaine de taux de cisaillement des mesures, ce qui peut être risqué. Nous pensons que pour le reste de notre étude il est préférable d'utiliser les paramètres du lissage CY1 et de tester la validité du lissage CY2 lors des confrontations des essais expérimentaux avec les simulations numériques.

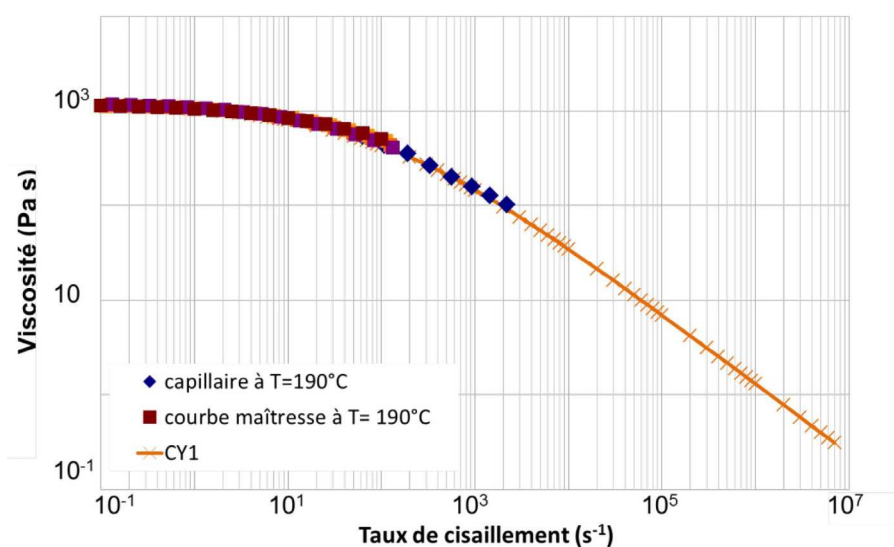


Figure 3-51 : Courbes Carreau Yasuda pour les faibles taux de cisaillement, PEHD.

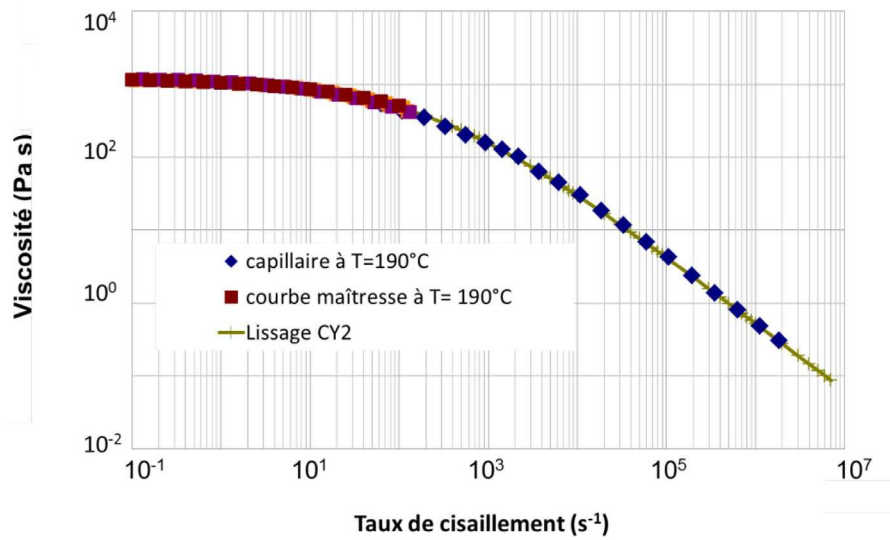


Figure 3-52 : Courbes Carreau Yasuda pour les hauts taux de cisaillement, PEHD.

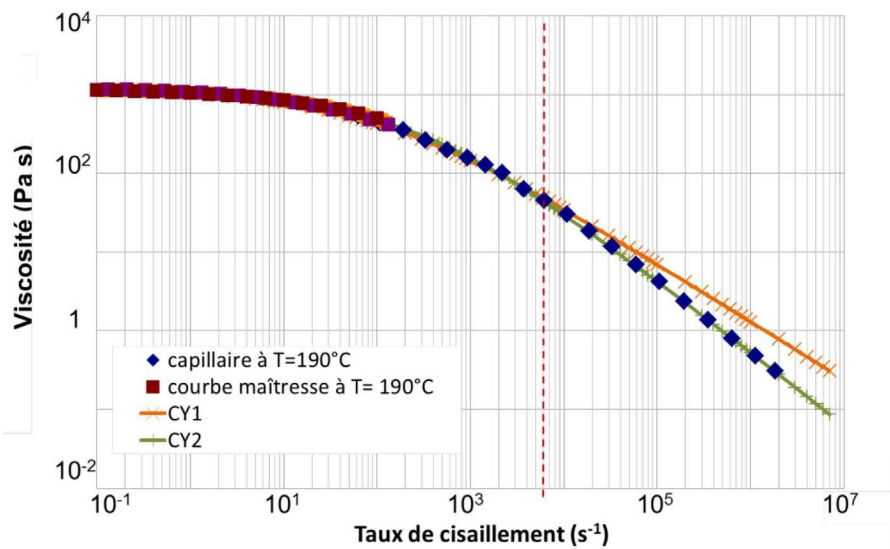


Figure 3-53 : Courbes des deux lissages Carreau Yasuda superposées, PEHD.

### *b) PMMA*

Dans les cas du PMMA, le problème des deux lissages ne se pose pas. Nous présentons la courbe de viscosité et le lissage de Carreau-Yasuda correspondant par la Figure 3-54.

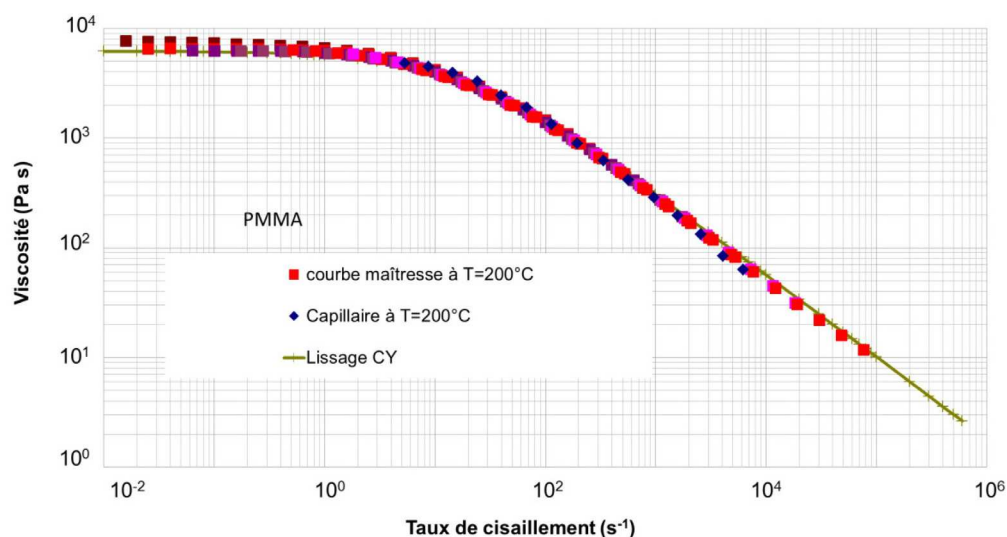


Figure 3-54 : Courbe de lissage Carreau Yasuda, PMMA.

Les données rhéologiques relatives à chaque lissage sont représentées par le Tableau 3-3. Les données de thermodépendance sont données par le Tableau 3-4. L'indice de pseudoplasticité du lissage CY2 est très faible par rapport aux données classiques des polymères. Nous sommes conscients que les conditions de mesures ont été poussées à l'extrême. L'exploitation de la rhéologie quand l'écoulement devient chaotique est discutable.

Matériaux	$T$ (°C)	$\eta_0$ (Pa.s)	$m$	$\lambda$ (s)	$a$
PEHD CY1	190	1200	0,26	0,01	0,5
PEHD CY2	190	1200	0,07	0,004	0,5
PMMA	200	6200	0,25	0,05	0,76

Tableau 3-3 Paramètres des lissages des courbes de viscosité selon la loi de Carreau-Yasuda.

	$T_{ref}$ (°C)	$E$ (kJ/mole)	$C_1$	$C_2$ (K)
PEHD	190	8,83	-	-
PMMA	200	76,99	9,74	262,83

Tableau 3-4 Paramètres des lois de dépendance de la viscosité avec la température.

## 3.5 Synthèse

Nous avons réalisé une étude rhéologique expérimentale de deux polymères avec des comportements différents, le PEHD et le PMMA.

Nous avons utilisé un rhéomètre oscillatoire, ARES, avec une régulation thermique précise. Celui-ci a permis de mesurer les domaines linéaires et de stabilité des matériaux en fonction du temps et de la température. Nous avons aussi déterminé les évolutions des modules élastiques et visqueux ainsi que ceux de la viscosité complexe en fonction de la fréquence pour une gamme de températures. Ces données ont permis de calculer les facteurs de glissement en temps-température selon des lois de thermodépendance existantes : Arrhenius ou WLF. L'énergie d'activation de la viscosité du PMMA est presque dix fois plus grande que celle du PEHD.

Nous avons par ailleurs utilisé un rhéomètre capillaire, le Rhéoplast, équipé de filières avec des longueurs différentes et des diamètres variant entre 1 et 0,3 mm.

Nous avons observé des défauts d'extrusion en sortie de filière à partir d'un certain taux de cisaillement, défauts habituellement rencontrés pour le polyéthylène et les polymères ramifiés comme le PMMA. Nous avons tenté de calculer les vitesses de glissement à la paroi pour le PEHD, selon les méthodes listées dans le chapitre bibliographique. Nous avons obtenu une estimation à l'aide de la méthode de Mooney qui est cohérente avec les données de la littérature. Elle n'est cependant pas assez fiable pour interpréter l'ensemble des mesures et le glissement a donc été négligé.

Certaines filières ont été équipées de thermocouples pour mesurer la température au cours de l'écoulement. Nous avons trouvé qu'à forts taux de cisaillement, l'échauffement dans la filière atteint 10 °C et la viscosité peut en être affectée.

Nous avons donc choisi de réaliser des dépouillements classiques pour obtenir la viscosité en fonction du taux de cisaillement, en supposant que l'écoulement est incompressible, isotherme, collant à la paroi, et en négligeant toute instabilité d'écoulement dans le capillaire.

Pour le PEHD, ceci est licite pour des taux de cisaillement inférieurs à environ  $10^4 \text{ s}^{-1}$ , valeur pour laquelle apparaissent des défauts oscillants. C'est pourquoi nous avons effectué deux dépouillements, l'un pour des taux de cisaillements inférieurs à  $10^4 \text{ s}^{-1}$ , avec des filières de diamètre 1 mm, l'autre au-delà avec des filières de diamètres 0,5 et 0,3 mm permettant d'atteindre  $5.10^6 \text{ s}^{-1}$ . Les courbes obtenues avec les différents diamètres de capillaires sont assez cohérentes entre elles, et avec la courbe de rhéologie dynamique. L'énergie d'activation du PEHD est faible et donc le principe de superposition temps-température ne permet pas d'élargir le domaine de fréquence de façon significative. Les mesures aux taux de cisaillement

les plus élevés sont entachées d'erreurs liées à la dissipation visqueuse, aux effets de piezodépendance et au glissement à la paroi. Un lissage selon une loi de Carreau Yasuda intégrant l'ensemble des points de mesures, noté CY2, aboutit à une valeur de l'indice de sensibilité à la vitesse de déformation de 0,07, ce qui n'est pas physique. Il est probable qu'il reflète les phénomènes non pris en compte dans le dépouillement, en particulier le glissement. En revanche, si nous basons le lissage (noté CY1) sur les points de mesures fiables (avant l'apparition de l'instabilité oscillante), nous trouvons un indice de plasticité de 0,26 conforme à la littérature. Nous allons dans la suite exploiter ces données dans un calcul d'écoulement, en particulier en microinjection. Si le calcul n'intègre pas le glissement, nous devrions obtenir de meilleurs résultats avec le lissage CY2. Si au contraire le calcul intègre une loi de glissement, les meilleurs résultats devraient être obtenus avec le lissage CY1. Ces conjectures vont être explorées dans les chapitres qui suivent.

Pour le PMMA, nous avons des mesures à 190, 195 et 200 °C dans des filières de 1 mm de diamètre qui permettent d'atteindre  $3,5 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$  et des mesures à 250 °C avec des filières de 0,5 mm de diamètre qui permettent d'atteindre  $5 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$ . Ces courbes, ramenées à une même température de référence à l'aide du coefficient de glissement déterminé en rhéologie dynamique, sont relativement dispersées. L'imprécision sur la température de l'essai, combinée à la forte thermodépendance du PMMA, ne semble pas seule responsable de ces écarts. Les courbes de rhéométrie capillaire encadrent la courbe de rhéométrie dynamique. Cette dernière couvre un très large domaine de taux de cisaillement (après superposition temps-température, et application de la règle de Cox et Merz), compte tenu de la très forte énergie d'activation du PMMA, alors que ce domaine est limité en capillaire en raison des défauts d'extrusion. Nous avons donc choisi de lisser par une loi de Carreau Yasuda la courbe de rhéométrie dynamique. Les valeurs des paramètres de cette loi sont cohérentes avec la littérature.

Notons que pour les deux polymères étudiés, nous n'observons pas à hauts taux de cisaillement l'apparition d'un second plateau newtonien.

Les données rhéologiques expérimentales ainsi déterminées vont être exploitées d'une part dans une modélisation de l'écoulement dans un capillaire (chapitre 4), et d'autre part dans une simulation numérique de la microinjection (chapitre 5).

Dans le chapitre qui suit, nous allons montrer, grâce à une analyse numérique de l'écoulement de Poiseuille tube, comment les différents phénomènes physiques, observés à hauts gradients de cisaillement, peuvent modifier l'allure de la courbe d'écoulement.

## 4 Chapitre Modèle rhéologique

Dans ce chapitre, nous calculons l'écoulement dans une filière cylindrique, avec une attention particulière pour le champ de pression, qui prend en compte les phénomènes dus à l'écoulement à forts taux de cisaillement. Dans ces conditions, la dissipation de chaleur n'est plus négligeable, et la viscosité est donc affectée. Les pressions atteintes sont assez importantes, et la compressibilité de même que la piezodépendance de la viscosité ne sont plus négligeables. Enfin, nous avons vu lors des mesures rhéologiques que le polymère peut glisser à la paroi. Le but est de comprendre comment ces différents phénomènes interagissent et peuvent perturber une mesure de rhéologie capillaire.

Dans ce chapitre, nous présentons tout d'abord les modèles physiques employés. Nous développons ensuite les équations à résoudre. Puis nous présentons les méthodes de résolution. Enfin, nous appliquons le calcul pour comprendre l'importance des différents paramètres habituellement négligés en rhéométrie capillaire : thermo- et piezo-dépendances de la viscosité, compressibilité, glissement.

### 4.1 Cadre du modèle

#### 4.1.1 Modèle mécanique

Nous négligeons la viscoélasticité en supposant que le polymère n'est pas en régime transitoire et que les contraintes sont établies. Cette hypothèse est délicate compte tenu des temps caractéristiques très courts du procédé et d'un nombre de Deborah élevé ( $De=10^2$  pour les fortes vitesses).

La viscosité dépend de la température  $T$ , de la pression  $p$  et du taux de cisaillement généralisé

$\dot{\gamma} = \sqrt{2 \sum_{i,j} \epsilon_{ij}^2}$ . Le polymère est compressible, c'est-à-dire que la masse volumique dépend

également de la température et de la pression. Le tenseur des contraintes  $\sigma$  s'écrit en fonction de la pression hydrostatique  $p$  et du tenseur des vitesses de déformation :

$$\sigma = -pI + 2\eta(p, T)\epsilon \quad \text{Équation 4-1}$$



Il est à noter que cette expression de la loi de comportement conduit nécessairement à un écoulement compressible, puisque  $tr\dot{\epsilon} = \frac{1}{2\eta}(tr\sigma - 3p) = 0$ , mais nous pouvons montrer que dans le cas d'un écoulement de cisaillement, cette équation reste valable (Silva et al., 2009). Nous étudions l'écoulement dans une filière cylindrique de rayon  $R$ , de longueur  $L$ , dont le champ de vitesse dans un système de coordonnées cylindrique est  $\mathbf{u}(r, \theta, z)$ . L'écoulement est supposé axisymétrique. Le champ de vitesse est donc de la forme :

$$\mathbf{u} = \begin{pmatrix} u(r, z) \\ 0 \\ w(r, z) \end{pmatrix}$$

Le tenseur des vitesses de déformation  $\epsilon$  s'écrit :

$$\epsilon = \begin{pmatrix} \frac{1}{2} \frac{\partial u}{\partial r} & 0 & \frac{1}{2} \frac{\partial u}{\partial z} + \frac{\partial w}{\partial r} \\ 0 & \frac{u}{r} & 0 \\ \frac{1}{2} \frac{\partial u}{\partial z} + \frac{\partial w}{\partial r} & 0 & \frac{\partial w}{\partial z} \end{pmatrix}$$

Si la température évolue le long du tube, ou (et) si le polymère est compressible, le champ de vitesse comporte en toute rigueur les deux composantes  $u$  et  $w$ . Nous supposons que les approximations de la lubrification hydrodynamique s'appliquent, ce qui fait que l'on peut négliger dans les équations d'équilibre les termes  $\frac{\partial u}{\partial r}$ ,  $\frac{u}{r}$ ,  $\frac{\partial u}{\partial z}$  et  $\frac{\partial w}{\partial z}$  devant  $\frac{\partial w}{\partial r}$ . La composante  $w$  dépend de  $r$  et  $z$ . Le tenseur des vitesses de déformation comporte donc les termes dominants suivants :

$$\epsilon = \begin{pmatrix} 0 & 0 & \frac{1}{2} \frac{\partial w}{\partial r} \\ 0 & 0 & 0 \\ \frac{1}{2} \frac{\partial w}{\partial r} & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

### 4.1.2 Modèle thermique

Le champ de température est en toute généralité bidimensionnel : l'échauffement prend naissance là où le taux de cisaillement est le plus important, c'est-à-dire près de la paroi, la température dépend donc du rayon  $r$ . La convection implique de plus que la température dépend de  $z$ . Le champ de température est donné par l'équation de la chaleur suivante, dans laquelle nous avons négligé la conduction devant la convection selon  $z$  (nombre de Péclet très petit):

$$\rho c \frac{\partial T}{\partial t} + u \frac{\partial T}{\partial r} + w \frac{\partial T}{\partial z} = k \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial T}{\partial r} \right) + \eta(p, \dot{\gamma}) \dot{\gamma}^2 \quad \text{Équation 4-2}$$

où  $\rho$  est la masse volumique,  $c$  la capacité calorifique,  $k$  la conductivité thermique supposée constante dans la gamme de température relativement homogène d'un essai rhéologique même à forte vitesse,  $\dot{\gamma}$  la vitesse de déformation généralisée définie par :  $\dot{\gamma} = \sqrt{2 \sum_{i,j} \epsilon_{ij}^2}$ , et

qui se réduit ici à  $\left| \frac{\partial w}{\partial r} \right|$ ,  $\alpha_d$  le coefficient de dilatation défini par :  $\alpha_d = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial \rho}{\partial T}$

Nous allons considérer une résolution stationnaire. De plus, dans le cadre des approximations de la lubrification hydrodynamique, nous ne calculons pas la composante de la vitesse selon le rayon,  $u$ . Nous négligerons donc le terme de convection selon  $r$  devant le terme de convection selon  $z$ . Une analyse plus poussée devrait être faite pour montrer que même au niveau de la paroi, là où il y a le plus d'échauffement, l'inégalité  $u \frac{\partial T}{\partial r} \ll w \frac{\partial T}{\partial z}$  reste valable. L'équation de la chaleur devient :

$$\rho c \frac{\partial T}{\partial z} = k \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial T}{\partial r} \right) + \eta(p, \dot{\gamma}) \dot{\gamma}^2 \quad \text{Équation 4-3}$$

### 4.1.3 Lois de comportement

#### 4.1.3.1 Comportement rhéologique

***a) Polymère thermodépendant***

- **Loi puissance**

La viscosité à la température de référence  $T_{ref}$  est de la forme :

$$\eta(\dot{\gamma}, T_{ref}) = K (T_{ref}) \dot{\gamma}^{m-1}$$

où  $K$  est la consistance, et  $m$  l'indice de sensibilité à la vitesse de déformation. En supposant que le principe de superposition temps-température s'applique, la viscosité à toute température est donnée par l'équation suivante :

$$\eta(\dot{\gamma}, T) = a_T(T) \eta(\dot{\gamma} a_T(T), T_{ref}) \quad \text{Équation 4-4}$$

$a_T(T)$  est le facteur de glissement entre la température de référence  $T_{ref}$  et la température  $T$ . Cette équation implique donc :

$$K(T) \dot{\gamma}^{m-1} = a_T(T) K(T_{ref}) (\dot{\gamma} a_T(T))^{m-1}$$

Nous constatons donc que la consistance dépend de la température par :

$$K(T) = (a_T(T))^m K(T_{ref})$$

- **Loi de Carreau-Yasuda**

Nous partons d'une courbe maîtresse établie à la température de référence  $T_{ref}$ . Cette courbe est lissée par la loi de Carreau-Yasuda :

$$\eta(\dot{\gamma}, T_{ref}) = \eta_0(T_{ref}) \left[ 1 + a \frac{\dot{\gamma}^{n-1}}{a} \right]^{-\frac{n-1}{a}} \quad \text{Équation 4-5}$$

Nous obtenons comme précédemment la viscosité à toute température par l'Equation 4-4. Celle-ci implique :

$$\eta(\dot{\gamma}, T) = \eta_0(T_{ref}) \left[ 1 + a \frac{\dot{\gamma}^{n-1}}{a} \right]^{-\frac{n-1}{a}} = \eta_0(T_{ref}) \left[ 1 + a \frac{(\dot{\gamma} a_T(T))^{n-1}}{a} \right]^{-\frac{n-1}{a}}$$

Nous constatons donc que la viscosité du plateau newtonien et le temps caractéristique dépendent de la température par :

$$\eta_0(T) = \eta_{0T}$$

$$(\diamond\diamond)\diamond\diamond_0(T_{\diamond\diamond e\diamond\diamond})$$

$$\lambda\left(T\right)=a_T\left(T\right)\lambda\left(T_{ref}\right)$$

- Le facteur de glissement peut être exprimé par :

- une loi d'Arrhenius : 
$$a_T = \exp \left( -\frac{E}{R(T - T_{ref})} \right)$$
, où  $E$  est l'énergie d'activation,  $R$

est la constante des gaz parfaits ;

- une loi WLF : 
$$a_T = \exp \left( \frac{C_1(T - T_g)}{C_2 + T - T_g} \right)$$

A noter qu'en toute rigueur, la température de référence devrait être la température de transition vitreuse  $T_g$ , comme indiqué dans l'expression précédente. Mais en pratique, on choisit une température de référence  $T_{ref}$  située dans la gamme de mesures rhéologiques. La loi employée est alors de la forme :

$$a'_T = \exp \left( -\frac{C_1(T - T_{ref})}{C_2 + T - T_{ref}} \right)$$

Nous pouvons trouver une relation entre  $C_1^g$ ,  $C_2^g$  et  $C_1$ ,  $C_2$ . En effet :

$$\eta(T) = a_T(T) \eta(T_g) = a'_T(T) \eta(T_{ref}) = a'_T(T) a_T(T_{ref}) \eta(T_g)$$

D'où :

$$a'_T(T) = \frac{a_T(T)}{a_T(T_{ref})} = \exp \left( -\frac{C_1^g(T - T_g)}{C_2^g + T - T_g} + \frac{C_1^g(T_{ref} - T_g)}{C_2^g + T_{ref} - T_g} \right)$$

Nous obtenons donc :

$$-\frac{C_1^g(T - T_g)}{C_2^g + T - T_g} + \frac{C_1^g(T_{ref} - T_g)}{C_2^g + T_{ref} - T_g} = -\frac{C_1(T - T_{ref})}{C_2 + T - T_{ref}}$$

En réduisant au même dénominateur :

$$C_1^g \frac{(T_{ref} - T) C_2^g}{(T - T_g + C_2^g)(T_{ref} - T_g + C_2^g)} = - \frac{C_1 (T - T_{ref})}{T - T_{ref} + C_2}$$

D'où :

$$C_1 = \frac{C_1^g C_2^g}{T_{ref} - T_g + C_2^g} \quad C_2 = T_{ref} - T_g + C_2^g$$

### ***b) Polymère thermodépendant et piezodépendant***

L'Equation 4-4 devient :

$$\eta(\dot{\gamma}, T, p) = a_T(T, p) \eta(\dot{\gamma} a_T(T, p), T_{ref}, p_{ref}) \quad \text{Équation 4-6}$$

- **Facteur de glissement avec la loi d'Arrhenius :** en supposant que le principe de superposition temps-température-pression s'applique, avec une relation exponentielle pour la pression (aussi appelée équation de Barus), nous obtenons :

$$a_T(T, p) = \exp \left[ -\frac{E_a}{R T} - \chi p \right] \quad \text{Équation 4-7}$$

où  $\chi$  est le coefficient de piezodépendance. Nous voyons que dès que la pression n'est pas nulle, elle contribue à augmenter la viscosité. Cependant, compte tenu de la valeur de  $\chi$  qui est de l'ordre de  $10^{-8} \text{ Pa}^{-1}$  pour un PEHD, cette contribution est faible jusqu'à des pressions de l'ordre de 100 bar (Tableau 4-1).

$p$	$10^5 \text{ Pa} = 1 \text{ bar}$	$10^6 \text{ Pa} = 10 \text{ bar}$	$10^7 \text{ Pa} = 100 \text{ bar}$	$10^8 \text{ Pa} = 1000 \text{ bar}$
$e^{\chi p}$	1,001	1,01	1,1	3

**Tableau 4-1 : Effet de la piezodépendance sur la viscosité en fonction de la valeur de la pression**

- **Facteur de glissement avec la loi WLF :** cette loi est basée sur la théorie du volume libre, celui-ci dépendant seulement de la température. Des extensions ont été proposées pour tenir compte du volume libre fonction de la température et de la pression. Tschoegl



et al. (2002) présentent une revue de différents facteurs de glissement pour l'analyse des propriétés mécaniques des polymères. Ils présentent en particulier la loi de Fillers-Moonan-Tschoegl, basée sur le volume libre, de la forme :

$$a_T(T, p) = \exp \left[ \frac{C_1 (T - T_{ref} - \theta(p))}{T - T_{ref} + C_2 - \theta(p)} \right] \quad \text{Équation 4-8}$$

Jansen et al. (1998) utilisent une loi de la forme suivante :

$$a_T(T, p) = \exp \left[ \frac{C_1 (T - T_{ref} - C_2 p)}{T - T_{ref} + C_3} \right] \quad \text{Équation 4-9}$$

Le numérateur de ces deux expressions montre que cela revient à considérer que la température de référence, qui est la température de transition vitreuse dans la formulation originale de la loi WLF, dépend de la pression. Cependant, pour Jansen et al. (1998) le dénominateur semble indépendant de la pression, au contraire de la loi de Fillers-Moonan-Tschoegl. La croissance de la température de transition vitreuse avec la pression est clairement visible sur la courbe PVT d'un polymère amorphe comme le PMMA représentée au paragraphe suivant. Cela montre qu'un jeu de données correct doit harmoniser les données rhéologiques et PVT, la physique étant commune.

La loi de Tait présentée au paragraphe suivant indique que la température de transition vitreuse varie linéairement avec la pression :  $T_g(p) = T_g(0) + b_6 p$ .

Alors la loi de Fillers-Moonan-Tschoegl peut s'exprimer ainsi :

$$a_T(T, p) = \exp \left[ \frac{C_1 (T - T_g(0) - b_6 p)}{T - T_g(0) + C_2 - b_6 p} \right] \quad \text{Équation 4-10}$$

La courbe maîtresse est obtenue à une température de référence  $T_{ref}$  située dans la gamme de mesure rhéologique (par exemple, pour le PMMA, 200 °C), et à une pression  $p_{ref}$ . Pour les essais en plan-plan,  $p_{ref}$  est la pression atmosphérique. La loi trouvée est de la forme :

$$a'_T(T, p_{ref}) = \exp \left[ -\frac{C_1 (T - T_{ref})}{T - T_{ref} + C_2} \right] \quad \text{Équation 4-11}$$

Nous ne connaissons pas a priori la forme générale de  $a'_T(T, p)$ . Nous posons :

$$\eta(T, p) = a_T(T, p) \eta(T_g(0), 0)$$

$$\eta(T, p) = a'_T(T, p) \eta(T_{ref}, p_{ref})$$

D'après la première équation :  $\eta(T_{ref}, p_{ref}) = a_T(T_{ref}, p_{ref}) \eta(T_g(0), 0)$ .

La deuxième équation devient donc :  $\eta(T, p) = a'_T(T, p) a_T(T_{ref}, p_{ref}) \eta(T_g(0), 0)$

En comparant à la première, nous obtenons :  $a_T(T, p) = a'_T(T, p) a_T(T_{ref}, p_{ref})$

$$\text{Soit : } a'_T(T, p) = \frac{a_T(T, p)}{a_T(T_{ref}, p_{ref})}$$

Compte tenu de l'expression générale de  $a_T(T, p)$ , nous obtenons :

$$a'_T(T, p) = \exp \left[ \frac{D}{C} - \frac{C_1^g (T - T_g(p))}{T - T_g(p) + C_2^g} + \frac{C_1^g (T_{ref} - T_g(p_{ref}))}{T_{ref} - T_g(p_{ref}) + C_2^g} \right]$$

$$\text{Or, pour } p = p_{ref}, \text{ nous avons : } a'_T(T, p_{ref}) = \exp \left[ \frac{D}{C} - \frac{C_1 (T - T_{ref})}{T - T_{ref} + C_2} \right]$$

$$\text{Soit : } -\frac{C_1^g (T - T_g(p_{ref}))}{T - T_g(p_{ref}) + C_2^g} + \frac{C_1^g (T_{ref} - T_g(p_{ref}))}{T_{ref} - T_g(p_{ref}) + C_2^g} = -\frac{C_1 (T - T_{ref})}{T - T_{ref} + C_2}$$

Après réorganisation, cela devient :

$$-\frac{C_1^g C_2^g}{T_0 - T_g(p_{ref}) + C_2^g} - \frac{T - T_{ref}}{T - T_{ref} + (T_{ref} - T_g(p_{ref}) + C_2^g)} = -C_1 \frac{T - T_{ref}}{T - T_{ref} + C_2}$$

$$\text{Nous obtenons alors : } C_1 = \frac{C_1^g C_2^g}{T_0 - T_g(p_{ref}) + C_2^g} \quad C_2 = T_{ref} - T_g(p_{ref}) + C_2^g$$

$$\text{Nous allons maintenant calculer } a'_T(T, p) = \frac{a_T(T, p)}{a_T(T_{ref}, p_{ref})}.$$

$$a'_T(T, p) = \frac{a_T(T, p)}{a_T(T_{ref}, p_{ref})} = \exp \left[ \frac{C_1}{T + C_2} - \frac{C_1}{T_{ref} + C_2} + \frac{T - T_{ref} + T_g(p_{ref}) - T_g(p)}{T - T_g(p) + C_2} \right]$$

$$= \exp \left[ \frac{C_1 C_2}{T_{ref} - T_g(p_{ref}) + C_2} - \frac{T - T_{ref} + T_g(p_{ref}) - T_g(p)}{T - T_g(p) + C_2} \right]$$

En utilisant les valeurs de  $C_1^g$  et  $C_2^g$ , nous obtenons :

$$a'_T(T, p) = \exp \left[ \frac{C_1}{T - T_g(p) + C_2} - \frac{T - T_{ref} + T_g(p_{ref}) - T_g(p)}{T - T_g(p) + C_2} \right]$$

Soit, compte tenu de la dépendance de la température de transition vitreuse avec la pression

$$T_g(p) = T_g(0) + b_6 p :$$

$$a'_T(T, p) = \exp \left[ \frac{C_1}{T - T_{ref} + b_6(p_{ref} - p)} - \frac{T - T_{ref} + b_6(p_{ref} - p)}{T - T_g(p) + C_2} \right]$$

$$\eta(T, p) = \exp \left[ \frac{C_1}{T - T_{ref} + b_6(p_{ref} - p)} - \frac{T - T_{ref} + b_6(p_{ref} - p)}{T - T_g(p) + C_2} \right] \eta(T_{ref}, p_{ref})$$

*Application numérique* : pour le PMMA :  $C_1 = 9,74$  ;  $C_2 = 262,83$  K ;  $b_6 = 2,1 \cdot 10^{-7}$  K/Pa ;  $T_{ref} = 473$  K ;  $p_{ref} = 10^5$  Pa.

Nous traçons l'évolution de  $\ln(a_T)$  avec la pression, Figure 4-1. Nous trouvons une évolution quasi linéaire, avec un coefficient de piezodépendance équivalent selon la loi de Barus de  $7,8 \cdot 10^{-9}$  Pa<sup>-1</sup>. L'ordre de grandeur est conforme à ce que l'on trouve dans la littérature.

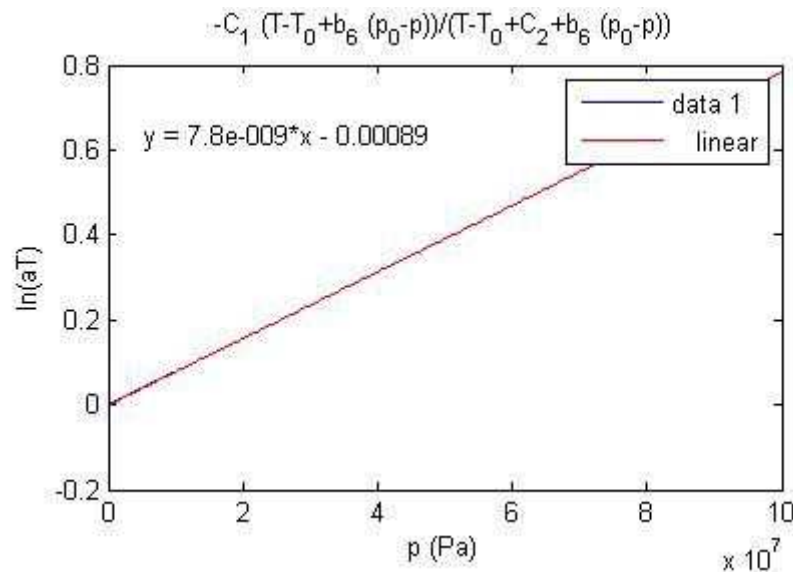


Figure 4-1 : Courbe de l'évolution de  $\ln(a_T)$  en fonction de la pression.

#### 4.1.3.2 Masse volumique

##### a) Loi de Tait

Nous avons besoin d'une équation d'état reliant la masse volumique  $\rho$  (ou le volume spécifique  $V$ ) à la température et la pression. Nous utilisons l'équation empirique de Tait. Elle est de la forme :

$$V(p, T) = V_0(T) \frac{D}{C} \ln \frac{D}{C} + \frac{p}{B(T)} \frac{V_0(T)}{C} + V_t(T, p) \quad \text{Équation 4-12}$$

où le coefficient  $C$  est une constante universelle égale à 0,0894.

$V_t(T, p)$  représente le saut de volume spécifique à la cristallisation. Ce terme est nul pour les polymères amorphes, et de peu d'intérêt pour notre calcul, puisque dans les conditions d'écoulement rhéométriques le polymère est toujours largement au-dessus de la température de cristallisation.

- Pour des températures supérieures à une température de transition notée  $T_t$ , et qui peut être la température de transition vitreuse pour un polymère amorphe, ou de cristallisation pour un polymère semi-cristallin, nous avons :

$$V_0(T) = b_{1m} + b_{2m} (T - b_5)$$

$$B(T) = b_{3m} \exp(-b_{4m} (T - b_5))$$

- Pour des températures inférieures à  $T_t$  :

$$V_0(T) = b_{1s} + b_{2s} (T - b_5)$$

$$B(T) = b_{3s} \exp(-b_{4s} (T - b_5))$$

- La température de transition varie avec la pression selon la loi :

$$T_t(P) = b_5 + b_6 P$$

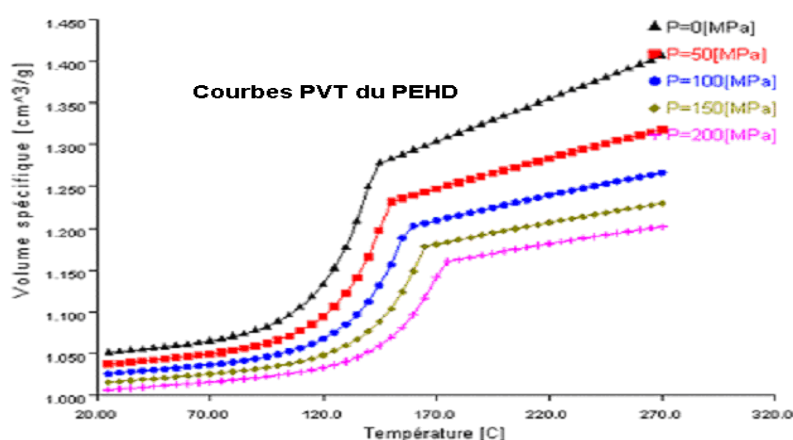
- La chute de volume à la cristallisation est représentée par :

$$V_t(\diamond\diamond, \diamond\diamond) = \diamond\diamond_7 \diamond\diamond_8 \exp(\diamond\diamond_8 (T - \diamond\diamond_5) - \diamond\diamond_9 \diamond\diamond)$$

Celle-ci ne sera pas utilisée car nous travaillons dans le domaine fluide.

### ***b) Données pour le PMMA et le PEHD***

La Figure 4-2 et la Figure 4-3 représentent respectivement les courbes PVT du PEHD (ELTEX HD-6070, Ineos Polyolefins) et du PMMA (ALTUGLAS VSE UVT TP 727, Arkema) [Ref : Données fournisseurs matière].



**Figure 4-2 : Courbes PVT du PEHD**

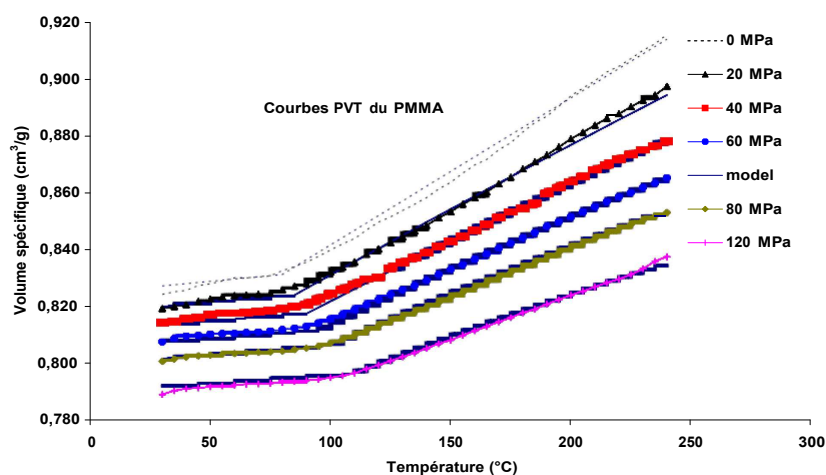


Figure 4-3 : Courbes PVT du PMMA

Les coefficients de l'équation de Tait sont définis dans le Tableau 4-2 pour le PMMA et le PEHD.

Coefficient	Unité	PMMA	PEHD
$b_{1m}$	$m^3/kg$	$8,315.10^{-4}$	$1,274.10^{-3}$
$b_{2m}$	$m^3/kg K$	$5,170.10^{-7}$	$1,026.10^{-6}$
$b_{3m}$	Pa	$1,446.10^8$	$9,263.10^7$
$b_{4m}$	1/K	$4,217.10^{-3}$	$4,941.10^{-3}$
$b_{1s}$	$m^3/kg$	$8,315.10^{-4}$	$1,075.10^{-3}$
$b_{2s}$	$m^3/kg K$	$8,084.10^{-8}$	$2,077.10^{-7}$
$b_{3s}$	Pa	$1,885.10^8$	$3,324.10^8$
$b_{4s}$	1/K	$5,789.10^{-4}$	$2,46.10^{-6}$
$b_5$	K	353,15	414,5
$b_6$	K/Pa	$2,1.10^{-7}$	$1,543.10^{-7}$
$b_7$	$m^3/kg$	0	$1,872.10^{-4}$
$b_8$	1/K	0	$5,158.10^{-2}$
$b_9$	1/Pa	0	$1,023.10^{-8}$

Tableau 4-2 Coefficients du modèle PVT de Tait pour le PMMA et le PEHD

### c) Expression du coefficient de dilatation volumique

Ce coefficient sera utilisé dans l'équation de la chaleur. Il est défini par :  $\alpha_d = \frac{1}{V} \frac{\partial V}{\partial p} \bigg|_T$ .



Nous obtenons à partir de la loi de Tait :

$$\alpha_d = \frac{b_2}{p^{b_1 + b_2(b_5 - b_4)}} - \frac{b_4 b_1 + b_2(b_5 - b_4)}{b_3 e^{-b_4 p^{b_1 + b_2(b_5 - b_4)}}} \quad \text{Équation 4-13}$$

#### 4.1.4 Conditions aux limites et initiales

Pour le calcul mécanique, nous imposons soit une vitesse nulle à la paroi, soit un glissement avec une loi de Norton qui sera développée plus loin. Le débit volumique en incompressible, ou massique en compressible, est imposé en entrée. La pression est supposée nulle en sortie.

Pour le calcul thermique, nous imposons la température à l'entrée. En paroi, nous pouvons imposer une température :  $T(R, z) = T_p$ , mais nous préférons une condition en flux à l'aide d'un coefficient de transfert thermique  $h_T$  :  $q = -k \frac{\partial T}{\partial r}(R, z) = h_T (T(R, z) - T_p)$

## 4.2 Equations

### 4.2.1 Détermination des champs de vitesse et pression sans glissement

#### 4.2.1.1 Equation d'équilibre

Le tenseur des contraintes s'écrit en fonction de la pression hydrostatique  $p$  et du déviateur de contraintes  $s$  :  $\sigma = -pI + s = -pI + 2\eta \dot{\epsilon}$ . La viscosité dépend de façon générale, de  $T(r, z)$ ,  $w(r, z)$ ,  $p(r, z)$ . Un calcul du comportement en loi puissance est présenté en Annexe A.

$$\sigma = \begin{pmatrix} -p & 0 & 0 \\ 0 & -p & 0 \\ 0 & 0 & -p \end{pmatrix} + 2\eta \begin{pmatrix} \frac{\partial w}{\partial r} & 0 & 0 \\ 0 & \frac{\partial w}{\partial r} & 0 \\ 0 & 0 & \frac{\partial w}{\partial r} \end{pmatrix}$$

Les équations de l'équilibre dynamique,  $\nabla \cdot \boldsymbol{\sigma} + \mathbf{F} - \rho \mathbf{g} = 0$ , se réduisent à  $\nabla \cdot \boldsymbol{\sigma} = 0$  en négligeant les forces d'inertie et de gravité. Nous pouvons remarquer que le nombre de

Reynolds est aux environs de 1 pour des taux de cisaillement de l'ordre de  $10^5 \text{ s}^{-1}$  et avec une viscosité correspondante de 1 à 10 Pa.s. Les termes d'inertie ne sont donc pas toujours négligeables. Compte tenu des approximations de la lubrification hydrodynamique, les équations d'équilibre deviennent :

$$\begin{aligned} \frac{\partial p}{\partial r} &= 0 \\ \frac{\partial p}{\partial \theta} &= 0 \\ \frac{\partial p}{\partial z} &= \frac{\partial}{\partial r} \left( \eta \frac{\partial w}{\partial r} \right) + \frac{\eta}{r} \frac{\partial w}{\partial r} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( \eta r \frac{\partial w}{\partial r} \right) \end{aligned}$$

La pression ne dépend que de  $z$ , et la dernière équation s'intègre en :

$$\frac{\partial w}{\partial r}(r, z) = \frac{r}{2\eta(r, z)} \frac{dp}{dz}(z) \quad \text{Équation 4-14}$$

Nous ne pouvons facilement intégrer rigoureusement cette équation pour obtenir la vitesse, car la viscosité en dépend. Comme nous le verrons, le processus de résolution est itératif. Nous pouvons supposer connu le champ de viscosité (fonction du gradient de vitesse de l'itération précédente). En tenant compte d'une condition de non glissement à la paroi, l'équation 4-14 s'intègre alors en :

$$w(r, z) = \frac{1}{2} \frac{dp}{dz}(z) \int_0^r \frac{\tau}{\eta(\tau, z)} d\tau \quad \text{Équation 4-15}$$

#### 4.2.1.2 Analyse incompressible

Notons que si la viscosité dépend de la pression, négliger la compressibilité est une approximation contestable. Nous calculons le débit  $Q$  :

$$Q = \int_0^R 2\pi w(r, z) r dr = \pi \frac{dp}{dz}(z) \int_0^R \int_0^r \frac{\tau}{\eta(\tau, z)} d\tau r dr$$

qui donne après intégration par partie :

$$Q = -\frac{\pi}{2} \frac{dp}{dz}(z) \int_0^R \frac{r^3}{\eta(r, z)} dr$$

D'où :

$$\frac{dp}{dz}(z) = -\frac{2}{\pi} \frac{Q}{\int_0^R \frac{r^3}{\eta(r,z)} dr} \quad \text{Équation 4-16}$$

Là encore, il est impossible d'intégrer rigoureusement si la viscosité dépend de la pression. Nous obtenons l'expression approximative de  $p(z)$  :

$$p(z) = \frac{2Q}{\pi} \int_z^L \frac{dz}{\int_0^R \frac{\tau^3}{\eta(\tau,z)} d\tau}$$

L'Equation 4-15 donne la vitesse et son gradient :

$$w(r,z) = -\frac{Q}{\pi} \frac{\int_0^r \frac{\tau}{\eta(\tau,z)} d\tau}{\int_0^R \frac{\tau^3}{\eta(\tau,z)} d\tau}$$

$$\frac{\partial w}{\partial r}(r,z) = -\frac{Q}{\pi} \frac{r}{\eta(r,z)} \frac{1}{\int_0^R \frac{\tau^3}{\eta(\tau,z)} d\tau}$$

#### 4.2.1.3 Analyse compressible

La masse volumique est telle que  $\rho = \rho(p(z), T(r,z))$ . Le débit massique  $\dot{m}$  s'écrit, avec l'approximation sur l'intégration conduisant à l'Equation 4-15 :

$$\dot{m} = \int_0^R 2\pi \rho(r,z) w(r,z) r dr = \pi \frac{dp}{dz}(z) \int_0^R \rho(r,z) \left[ \int_0^r \frac{\tau}{\eta(\tau,z)} d\tau \right] r dr$$

$$\frac{dp}{dz}(z) = \frac{\dot{m}}{\pi \int_0^R \rho(r,z) \left[ \int_0^r \frac{\tau}{\eta(\tau,z)} d\tau \right] r dr} \quad \text{Équation 4-17}$$

Après intégration, avec la condition aux limites  $p(L) = 0$  :

$$p(z) = -\frac{\dot{m}}{\pi} \int_z^L \frac{dz}{\int_0^R \rho(r, z) \frac{d}{dr} \left[ \int_r^R \frac{\tau}{\eta(\tau, z)} d\tau \right] \frac{1}{r} dr}$$

Nous reportons l'expression de  $\frac{dp}{dz}$  dans l'équation 4-15 pour obtenir la vitesse, puis son gradient :

$$w(r, z) = \frac{\dot{m}}{2\pi} \frac{\int_r^R \frac{\tau}{\eta(\tau, z)} d\tau}{\int_0^R \rho(r, z) \frac{d}{dr} \left[ \int_r^R \frac{\tau}{\eta(\tau, z)} d\tau \right] \frac{1}{r} dr}$$

$$\frac{\partial w}{\partial r}(r, z) = -\frac{r}{2\pi \eta(r, z)} \frac{\dot{m}}{\int_0^R \rho(v, z) \frac{d}{dv} \left[ \int_v^R \frac{\tau}{\eta(\tau, z)} d\tau \right] \frac{1}{v} dv}$$

#### 4.2.2 Prise en compte du glissement à la paroi

Nous considérons la loi de glissement de Norton qui est définie par un modèle en loi puissance reliant la contrainte de cisaillement à la paroi, notée  $\tau_p$ , à la vitesse de glissement notée  $V_g(z) = w(R, z)$  :

$$\tau_p = \alpha(T, p) |V_g|^n \quad \text{Équation 4-18}$$

où  $n$  est une constante et  $\alpha$  est un paramètre qui dépend en toute généralité de la température (dans la littérature, nous trouvons souvent la même thermodépendance que pour la viscosité, voir par exemple Anasari et al., 2012), de la pression, de la nature du matériau et de la nature du métal du capillaire (matériau et rugosités d'usinage). Dans cette étude, nous ne considérerons pas ces dépendances, et  $\alpha$  sera une constante.  $\tau_p$  est ici positif, c'est la valeur absolue de la contrainte de cisaillement à la paroi, qui, elle, est négative.

D'après l'équation d'équilibre dynamique, nous avons obtenu l'équation 4-14 :

$$\frac{\partial w}{\partial r}(r, z) = \frac{r}{2\eta(r, z)} \frac{dp}{dz}(z) \quad \text{Équation 4-19}$$

Après intégration, nous obtenons :

$$w(r, z) = \frac{1}{2} \frac{dp}{dz}(z) \int_r^R \frac{\tau}{\eta(\tau, z)} d\tau + V_g(z) \quad \text{Équation 4-20}$$

#### 4.2.2.1 Analyse incompressible

Par intégration, nous obtenons le débit :  $Q = -\frac{\pi}{2} \frac{dp}{dz}(z) \int_0^R \frac{\tau^3}{\eta(\tau, z)} d\tau + \pi R^2 V_g$

d'où :

$$\frac{dp}{dz}(z) = \frac{-Q + \pi R^2 V_g}{\frac{\pi}{2} \int_0^R \frac{\tau^3}{\eta(\tau, z)} d\tau} \quad \text{Équation 4-21}$$

$$\text{Et comme } \tau_p = -\frac{R}{2} \frac{dp}{dz}(z) = -\frac{R}{2} \frac{-Q + \pi R^2 V_g}{\frac{\pi}{2} \int_0^R \frac{\tau^3}{\eta(\tau, z)} d\tau} = \alpha(R, z) V_g^n$$

nous obtenons l'équation suivante :

$$\alpha(R, z) V_g^n \pi \int_0^R \frac{\tau^3}{\eta(\tau, z)} d\tau + \pi R^3 V_g - QR = 0 \quad \text{Équation 4-22}$$

Nous pouvons résoudre cette dernière équation numériquement pour obtenir  $V_g$ .

Nous pouvons intégrer l'équation 4-21 pour avoir le champ de pression :

$$p(z) = \frac{2}{\pi} \int_z^L \frac{Q - \pi R^2 V_g(z)}{\int_0^R \frac{\tau^3}{\eta(\tau, z)} d\tau} dz$$

Les équations 4-20 et 4-21 donnent la vitesse :

$$w(r, z) = \frac{1}{\pi} (Q - \pi R^2 V_g) \frac{\int_r^R \frac{\tau}{\eta(\tau, z)} d\tau}{\int_0^R \frac{\tau^3}{\eta(\tau, z)} d\tau} + V_g(z)$$

Le gradient de vitesse s'obtient à partir l'équation 4-19 :

$$\frac{\partial w}{\partial r}(r, z) = \frac{r}{\pi \eta(r, z)} \frac{-Q + \pi R^2 V_g(z)}{\int_0^R \frac{\tau^3}{\eta(\tau, z)} d\tau}$$

#### 4.2.2.2 Analyse compressible

En tenant compte de l'équation 4-20, nous obtenons :

$$\begin{aligned} \dot{m} &= \int_0^R 2\pi \rho(r, z) w(r, z) r dr \\ &= \int_0^R 2\pi \rho(r, z) \frac{1}{2} \frac{dp}{dz}(z) \frac{r^2}{\int_0^R \frac{\tau^3}{\eta(\tau, z)} d\tau} d\tau + V_g(z) \int_0^R \rho(r, z) r dr \\ &= \pi \frac{dp}{dz}(z) \int_0^R \rho(r, z) \frac{r^2}{\int_0^R \frac{\tau^3}{\eta(\tau, z)} d\tau} d\tau + 2\pi V_g(z) \int_0^R \rho(r, z) r dr \end{aligned}$$

D'où  $\frac{dp}{dz}$  :

$$\frac{dp}{dz}(z) = \frac{\dot{m} - 2\pi V_g(z) \int_0^R \rho(r, z) r dr}{\pi \int_0^R \rho(r, z) \frac{r^2}{\int_0^R \frac{\tau^3}{\eta(\tau, z)} d\tau} d\tau} \quad \text{Équation 4-23}$$

$$\begin{aligned} \text{Et comme } \tau_p(z) &= -\frac{R}{2} \frac{dp}{dz}(z) = -\frac{R}{2\pi} \frac{\dot{m} - 2\pi V_g(z) \int_0^R \rho(r, z) r dr}{\int_0^R \rho(r, z) \frac{r^2}{\int_0^R \frac{\tau^3}{\eta(\tau, z)} d\tau} d\tau} = \alpha(R, z) (V_g(z))^n \\ &\quad \int_0^R \rho(r, z) \frac{r^2}{\int_0^R \frac{\tau^3}{\eta(\tau, z)} d\tau} d\tau \end{aligned}$$

Nous obtenons :

$$\alpha(R, z) \frac{R}{2} \int_0^R \rho(r, z) \frac{r^2}{\int_0^R \frac{\tau^3}{\eta(\tau, z)} d\tau} d\tau (V_g(z))^n + R \left( \int_0^R \rho(r, z) r dr \right) V_g(z) - \frac{\dot{m} R}{2\pi} = 0$$

Nous vérifions que si la masse volumique est constante, nous retrouvons sur l'équation en  $V_g$  incompressible. Cette équation peut être résolue numériquement pour obtenir  $V_g$ .

Nous pouvons ensuite intégrer l'équation 4-23 pour obtenir le champ de pression :



$$p(z)=\frac{1}{\pi}\int_z^L\frac{\dot{m}-2\pi V_g(z)\int_0^R\rho(r,z)rdr}{\int_0^R\rho(r,z)\frac{D}{C}dr}\frac{D}{C}drdz$$

Les équations 4-20 et 4-23 donnent la vitesse :

$$w(r, z) = \frac{1}{2\pi} \left( -m - 2\pi V_g(z) \int_0^R \rho(r, z) r dr \right) \frac{\int_0^R \eta(\tau, z) d\tau}{\int_0^R \rho(r, z) dr} + V_g(z)$$

Le gradient de vitesse s'obtient par les équations 4-19 et 4-23 :

$$\frac{\partial w}{\partial r}(r, z) = \frac{-m + 2\pi V_g(z) \int_0^R \rho(r, z) r dr}{2\pi \eta(r, z) \int_0^R \rho(r, z) dr} - \frac{\int_0^R \rho(r, z) dr}{\int_0^R \rho(r, z) dr} \frac{\partial \eta(r, z)}{\partial r}$$

Remarque : dans le cas newtonien isotherme incompressible, avec  $m = 1$ , nous pouvons résoudre analytiquement, et nous obtenons :

$$\frac{dp}{dz} = -\frac{8\eta Q}{\pi R^4} \frac{1}{1 + \frac{4\eta}{\alpha R}}$$

$$w(r, z) = 2 \frac{Q}{\pi R^2} \frac{1 - \frac{r^2}{R^2} + \frac{2\eta}{\alpha R}}{1 + \frac{4\eta}{\alpha R}}$$

La vitesse de glissement est alors :

$$w(R, z) = \frac{4Q}{\pi R^2} \frac{\frac{\eta}{\alpha R}}{1 + \frac{4\eta}{\alpha R}}$$

$\alpha R$

$$Q = \frac{1}{\pi R^2} \int_0^R 4\eta \, r \, dr$$

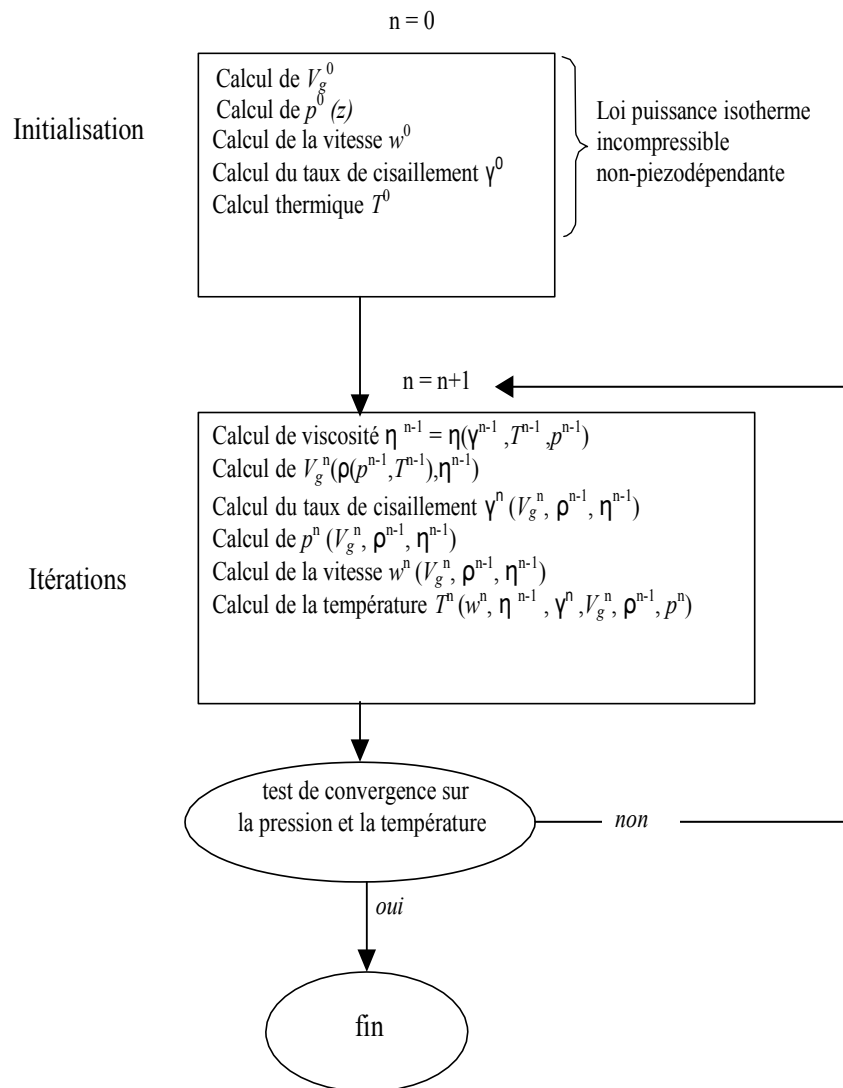
Nous vérifions bien qu'elle est inférieure à la vitesse moyenne  $Q/\pi R^2$ .

Une analyse incompressible, isotherme, avec une viscosité en loi puissance non piezodépendante et avec glissement, qui permet de vérifier le calcul, est présentée en annexe B.

## **4.3 Description du modèle numérique**

### **4.3.1 Organigramme**

L'organigramme du calcul est donné ci-dessous. Les calculs sont menés à chaque itération sur l'ensemble du tube, et les itérations ont été mises en place pour établir le couplage entre mécanique et thermique. L'initialisation est menée en supposant un écoulement isotherme incompressible non-piezodépendant, avec une loi puissance tangente à la loi de Carreau employée ensuite. La vitesse de glissement est déterminée. Un premier champ de température est ensuite déterminé. Ensuite, nous itérons en réactualisant successivement mécanique et température, jusqu'à ce que pression et température n'évoluent plus.



Les calculs ont été menés avec le logiciel Matlab. Les calculs d'intégrale ont été effectués par la méthode de trapèzes à l'aide de la fonction « trapz ». Le calcul de la vitesse de glissement a été obtenu à l'aide de la fonction « fzero ». Le calcul thermique est mené avec la fonction « pdepe ».

## 4.3.2 Test de la discrétisation

### 4.3.2.1 Données du calcul

Nous considérons un calcul rhéologique avec une loi de Carreau Yasuda (données proches de celles du PEHD), une thermodépendance avec une loi d'Arrhenius (l'énergie d'activation correspond à celle du PEHD), une piezodépendance exponentielle (paramètres dont l'ordre de grandeur est issu de la littérature), une compressibilité par la loi de Tait (données du PEHD) et un glissement à la paroi suivant une loi de Norton (paramètres dont les ordres de grandeur sont issus de la littérature), dont les paramètres du calcul sont donnés par le Tableau 4-3. Les données de thermiques sont présentées par le Tableau 4-4. Nous choisissons un coefficient de transfert thermique de  $500 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ .

Loi de Carreau Yasuda		Loi de Tait	
$\eta_0$ [Pa.s]	1200	$b_1$ [m <sup>3</sup> /kg]	$1,2.10^{-3}$
$\lambda$ [s]	0,01	$b_2$ [m <sup>3</sup> /kg K]	$1.10^{-6}$
$a$	0,5	$b_3$ [Pa]	$9,2.10^7$
$m$	0,26	$b_4$ [1/K]	$4,9.10^{-3}$
Loi d'Arrhenius		$b_5$ [K]	414,5
$E_a$ [kJ/mole]	8,83	$b_6$ [K/Pa]	$1,54.10^{-7}$
$T_{ref}$ [K]	463	$C$	0,0894
Loi de Piezodépendance exponentielle			
$\chi$ [Pa <sup>-1</sup> ]	$2.10^{-8}$		
Loi de Norton			
$\alpha$ [Pa.s <sup>n</sup> .m <sup>-n</sup> ]	$10^6$		
$n$	0,5		

Tableau 4-3 Données des lois pour les calculs d'initialisation.

Thermique		
Capacité calorifique	$\rho.c$ [J/°C m <sup>3</sup> ]	$2.10^6$
Coefficient de transfert thermique	$h_T$ [W/m <sup>2</sup> .K]	500
Conductivité thermique	$k$ [W/m.K]	0,2
Diffusivité	$a$ [m <sup>2</sup> /s]	$10^{-7}$

Tableau 4-4 Données thermiques pour les calculs.

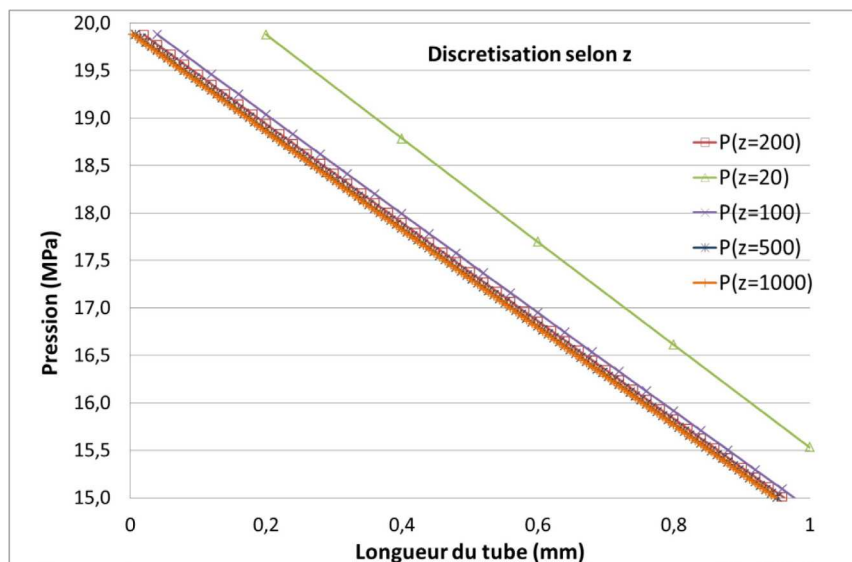
Les températures de régulation et du polymère en entrée, les paramètres géométriques et procédé sont donnés au le Tableau 4-5.

Conditions et paramètres		
Température de régulation	$T_p$ [K]	479
Température initiale	$T_0$ [K]	479
Rayon du tube	$R$ [mm]	0,25
Longueur du tube	$L$ [mm]	4
Débit	$Q$ [m <sup>3</sup> /s]	$6,283 \cdot 10^{-7}$
Taux de cisaillement apparent	$\dot{\gamma}_{app}$ [s <sup>-1</sup> ]	$5,2 \cdot 10^4$

**Tableau 4-5 Données des conditions et paramètres pour les calculs.**

#### 4.3.2.2 Discretisation

Nous avons testé l'incidence du nombre de nœuds selon  $z$  et selon  $r$ . Pour le test, nous avons considéré respectivement la valeur de la pression et les profils de température selon le rayon  $r$  à trois valeurs de  $z$ . Les calculs se font avec un tube de longueur 4 mm et de rayon 0,25 mm. Pour un nombre de nœuds suivant  $r$  de 60, la Figure 4-4 présente l'évolution de la pression en fonction de la longueur du tube pour des nombres de nœuds suivants selon  $z$  : 20, 100, 200, 500 et 1000.

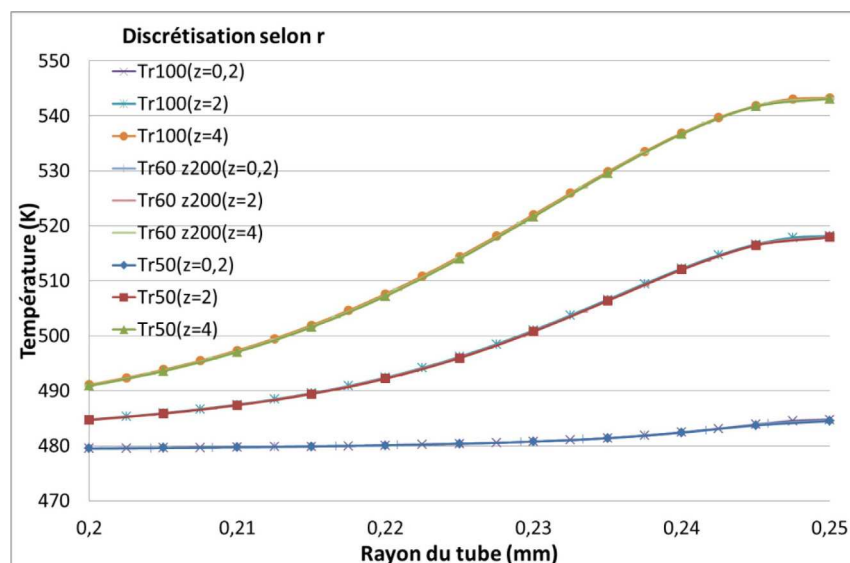


**Figure 4-4 : Discretisation selon  $z$  : courbe de pression en fonction de la longueur du tube (seule la portion de tube comprise entre  $z = 0$  et  $z = 1$  mm est représentée).**

Nombre de nœuds selon $z$	Pression (MPa) à 0,2 mm de l'entrée du tube	Ecart par rapport à la valeur suivante (%)
20	19,87	4,24
100	19,03	0,52
200	18,93	0,32
500	18,87	0,11
1000	18,85	

**Tableau 4-6 : Valeurs de pression à une longueur de tube fixée (0,2 mm de l'entrée) pour différents nombre de nœuds selon  $z$ .**

Pour une position donnée le long du tube (0,2 mm de l'entrée), l'écart entre les valeurs de pressions pour les discrétisations à 20 nœuds et à 100 nœuds est de 4,24 %. Cet écart devient inférieur à 1 % pour les discrétisations suivantes (Tableau 4-6). Nous choisissons de travailler avec un nombre de nœuds selon  $z$  égal à 200.



**Figure 4-5 : Discretisation selon  $r$  : courbe de température en fonction du rayon du tube pour trois positions le long du tube ( $z = 0,2$  mm,  $z = 2$  mm et  $z = 4$  mm).**

La Figure 4-5 présente l'évolution de la température selon le rayon du tube à trois positions selon  $z$  (0,2 ; 2 ; 4 mm) pour des nombres de nœuds selon le rayon  $r$  suivants : 50, 60, 100. Pour les différentes positions dans le tube, les écarts entre les valeurs de températures pour les trois discrétisations sont inférieurs à 1 %. Toutefois, le temps de calcul est deux à trois fois



plus important entre la plus fine et la plus large discrétisation. Nous choisissons de travailler pour la suite avec un nombre de nœuds suivant  $r$  égal à 60.

Nous vérifions également l'effet du nombre de nœuds suivant  $z$  sur les profils de température, avec un nombre de nœuds suivant  $r$  fixé à 60, Figure 4-6. Les écarts entre les deux discrétisations considérées (200 et 500) restent inférieurs à 1 %.

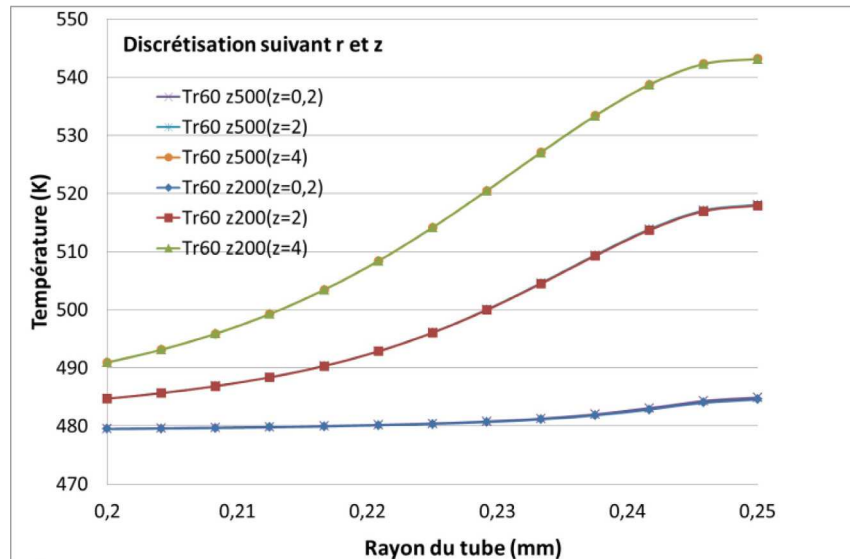


Figure 4-6 : Discretisation selon  $z$  : courbe de température en fonction du rayon du tube pour trois positions le long du tube ( $z= 0,2$  mm,  $z= 2$  mm et  $z= 4$  mm).

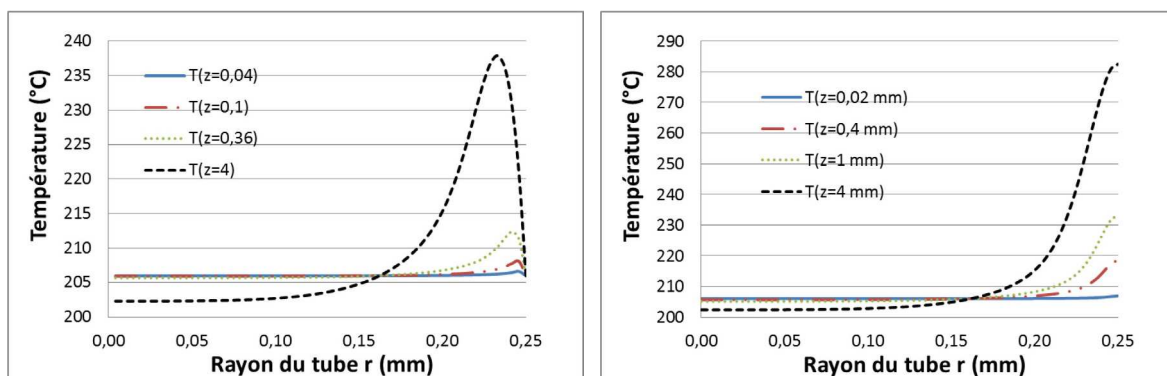
Dans la suite du calcul, nous travaillerons avec 200 nœuds selon  $z$  et 60 nœuds selon  $r$ .

#### 4.3.2.3 Choix des conditions aux limites thermiques

Nous voyons une élévation importante de la température près de la paroi (Figure 4-5 et Figure 4-6). Nous pourrions penser que celle-ci conduise à une viscosité très faible, donc une faible puissance dissipée, et un échauffement moindre. Mais la puissance dissipée, en newtonien, est fonction du taux de cisaillement au carré. C'est ce dernier qui est dominant. Par ailleurs, avec notre analyse purement visqueuse, les contraintes sont établies instantanément, et ainsi de même pour la puissance dissipée, alors que le polymère est viscoélastique. Nous avons vu, au paragraphe 3.3.3.1, que le temps d'établissement de la pression aux plus forts taux de cisaillement est proche du temps de l'expérience. Notre calcul doit donc surestimer l'échauffement.

Nous avons le choix entre deux conditions aux limites, une température imposée, ou une condition en coefficient de transfert thermique. La Figure 4-7 compare les deux profils de température. Nous constatons dans les deux cas que l'échauffement augmente le long du tube. L'échauffement final est beaucoup plus faible, de l'ordre de 30 °C avec la température imposée qu'avec l'autre condition (de l'ordre de 75 °C). Cette dernière valeur paraît irréaliste, mais le temps de séjour du polymère est très faible, inférieur à 1 ms. La température imposée paraît tout de même moins réaliste, car le capillaire n'est pas régulé. Nous remarquons aussi que la température dans le centre du tube (à  $z = 4$  mm) est inférieure à la température d'entrée du polymère, Figure 4-7, nous commenterons ce phénomène plus loin.

Nous avons donc choisi de travailler avec la condition en coefficient de transfert thermique et nous avons testé différentes valeurs de  $h_T$  200, 500 et 1000  $\text{W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ . Les différences ne sont pas importantes, ce qui s'explique par le faible temps de séjour comparativement au temps de diffusion de la chaleur (nombre de Cameron). Nous sommes en régime quasiment adiabatique, Figure 4-8.



**Figure 4-7 : Evolution des profils de températures selon le rayon ( $R = 0,25$  mm) du tube pour différentes position le long de celui-ci ( $L = 4$  mm) pour deux conditions aux limites différentes : température imposée (à gauche) et flux de température (à droite).**

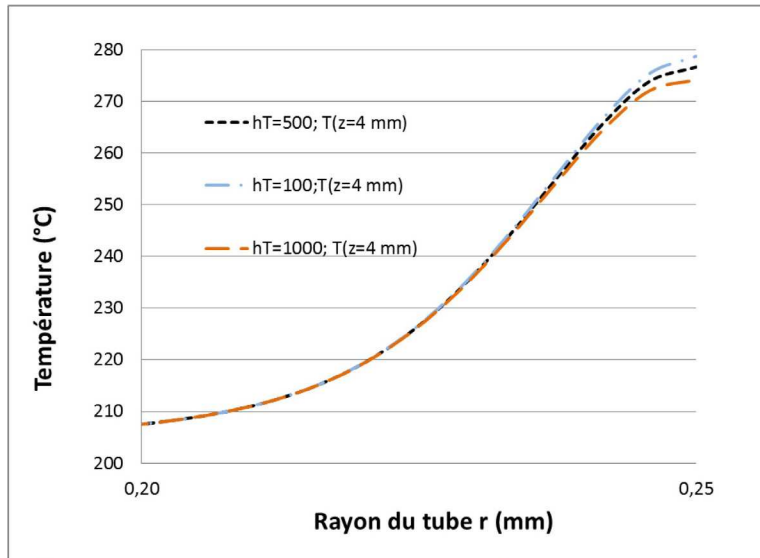


Figure 4-8 : Sensibilité du calcul au coefficient de transfert thermique.

#### 4.3.2.4 Sensibilité du calcul aux constantes de la loi de glissement

Les paramètres de la loi de glissement pour le PEHD ont été difficiles à évaluer. Nous testons donc la sensibilité du calcul par rapports aux constantes de la loi de glissement de Norton. Nous faisons varier les constantes  $\alpha$  et  $n$  par rapport à des valeurs prises dans la littérature et celles approximativement déterminées au chapitre 3. Nous choisissons un écoulement dans un tube de diamètre 0,5 mm et de longueur 8 mm avec un débit de  $2010 \text{ mm}^3/\text{s}$ , soit une vitesse moyenne de  $10,24 \text{ m/s}$  et un taux de cisaillement de  $1,64 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$ .

Pour  $\alpha$  égal à  $10^6 \text{ Pa.s}^n \cdot \text{m}^{-n}$  et pour des valeurs de  $n$  de 0,5 ; 0,3 ; 0,25 et 0,2, nous superposons les courbes des vitesses de glissement en fonction de la longueur du tube, ainsi que celles du rapport entre la vitesse de glissement et la vitesse moyenne, Figure 4-9.

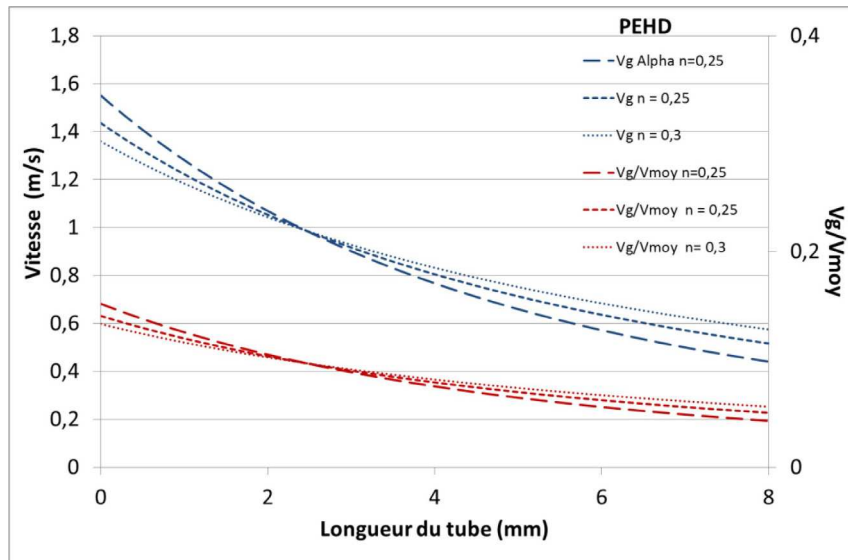


Figure 4-9 : Sensibilité du calcul au coefficient  $n$  de la loi de glissement de Norton. Evolution de la vitesse de glissement en fonction de la longueur du tube.

Nous remarquons que plus la valeur de  $n$  est petite, plus important est le glissement près de l'entrée du tube, mais plus il est faible près de la sortie. La variation significative du glissement le long du tube est liée au fait que la température augmente le long du tube, ce qui fait que  $\tau_p$  diminue et de même pour le glissement. Dans tous les cas, la vitesse de glissement est inférieure à 15 % de la vitesse moyenne en entrée, et diminue à 4 % en extrémité de tube. Les écarts entre les différentes vitesses de glissement sont relativement faibles. Nous vérifions l'effet de ces variations sur l'évolution de la pression en entrée du tube et nous trouvons que ce facteur  $n$  n'a pas une grande influence sur les résultats du calcul, Figure 4-10.

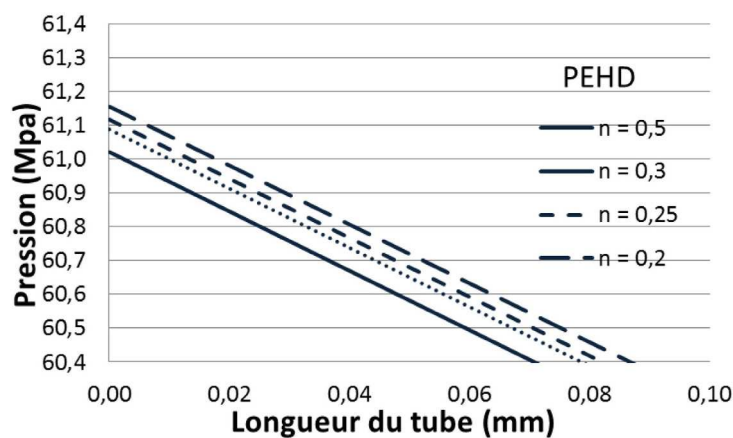
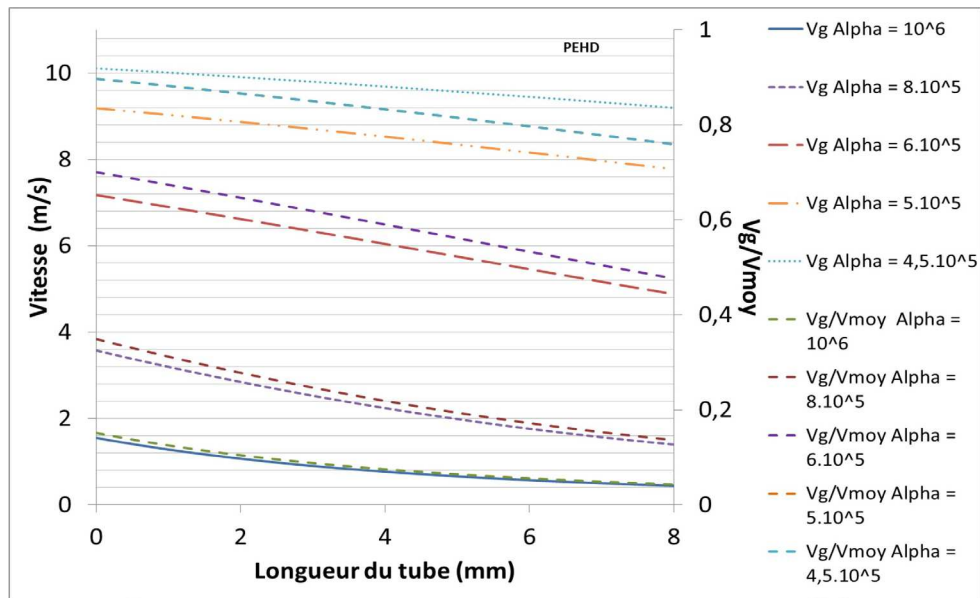


Figure 4-10 : Sensibilité du calcul au coefficient  $n$  de la loi de glissement de Norton. Variation de la pression en entrée du tube.

Nous testons maintenant pour  $n$  égale à 0,2 et l'incidence de  $\alpha$ , avec les valeurs suivantes (en unité SI) :  $10^6$ ,  $8.10^5$ ,  $6.10^5$ ,  $5.10^5$  et  $4,5.10^5$ . Nous traçons les évolutions de la vitesse de glissement et du rapport entre la vitesse de glissement et la vitesse moyenne, Figure 4-11.



**Figure 4-11 : Sensibilité du calcul au coefficient  $\alpha$  de la loi de glissement de Norton. Evolution de la vitesse de glissement en fonction de la longueur du tube.**

Pour une valeur de  $\alpha$  de  $10^6 \text{ Pa.s}^n.\text{m}^{-n}$ , la vitesse de glissement en entrée représente 15 % de la vitesse moyenne et pour une valeur de  $\alpha$  de  $4,5.10^5 \text{ Pa.s}^n.\text{m}^{-n}$ , la vitesse de glissement est presque égale à la vitesse moyenne. Nous testons l'impact de la valeur de  $\alpha$  sur l'évolution de la pression dans le tube, Figure 4-12. La pression en entrée passe de 60 MPa avec un ratio vitesse de glissement / vitesse moyenne de 15 %, à 45 MPa, avec un ratio de l'ordre de 1. Cela constitue donc une diminution de 15 % qui peut paraître modeste. Ceci peut être expliqué par le fait que pour un faible glissement, le taux de cisaillement est élevé près de la paroi, et la viscosité faible par effet pseudoplastique, alors que pour un fort glissement, le gradient de vitesse près de la paroi sera faible, et donc la viscosité comparativement élevée.

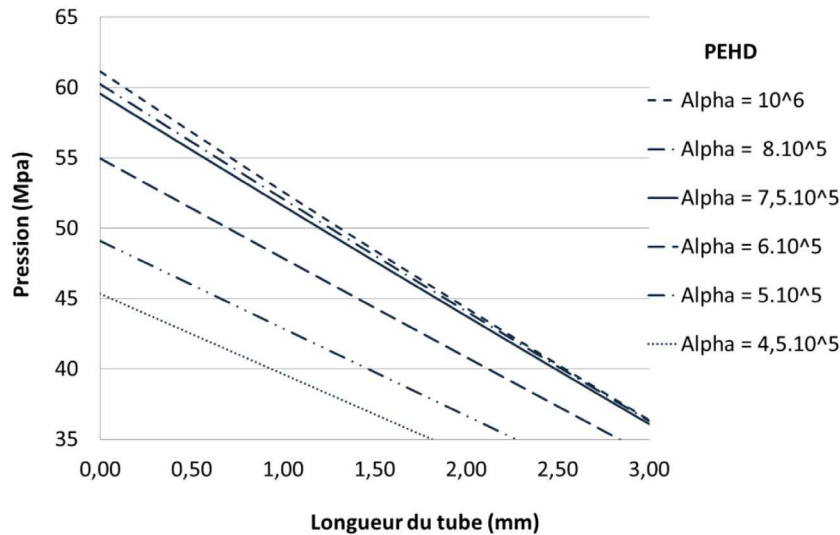


Figure 4-12 : Sensibilité du calcul au coefficient  $\alpha$  de la loi de glissement de Norton. Variation de la pression en entrée du tube.

## 4.4 Influence des phénomènes physiques

Nous testons ici l'incidence de différents paramètres physiques : thermo- et piezo-dépendances de la viscosité, compressibilité, glissement à la paroi. L'idée est de faire des calculs en tenant compte de ces paramètres physiques progressivement. Dans un premier temps, le calcul tient compte de la thermodépendance de la viscosité uniquement. Dans un second temps, nous introduisons les notions de compressibilité et de piezodépendance de la viscosité. Enfin, nous rajoutons l'effet du glissement à la paroi.

### 4.4.1 Données utilisées

Le polymère suit une loi de Carreau Yasuda, avec pour le PEHD une loi d'Arrhenius avec piezodépendance en exponentielle, et pour le PMMA, une loi de piezodépendance introduite dans la loi WLF. Le choix de cette dernière loi pour le PMMA est plus réaliste du point de vue physique. Cependant, pour ce polymère, nous avons également testé la loi d'Arrhenius avec piezodépendance en exponentielle qui peut se justifier lorsque l'on s'écarte trop de la température de transition vitreuse.

La loi de Tait et les valeurs des paramètres ont été indiquées au paragraphe §4.1.3.2 (a).

Nous modélisons l'écoulement du PEHD et du PMMA dans un capillaire de longueur  $L = 4$  mm et de rayon  $R = 0,25$  mm à 206 °C et 250 °C respectivement. Les paramètres des matériaux utilisés sont listés dans le Tableau 4-7. Pour le PEHD, nous avons choisi le lissage CY1, car notre calcul tient compte du glissement.

		PMMA	PEHD
<b>Viscosité</b>	$\eta_0$ [Pa.s]	6200	1200
<b>Temps caractéristique</b>	$\lambda$ [s]	0,05	0,01
<b>Paramètre de transition</b>	$a$	0,76	0,5
<b>Indice de pseudoplasticité</b>	$m$	0,25	0,26
<b>Energie d'activation</b>	$Ea$ [kJ/mole]	76,99	8,83
<b>Température de référence</b>	$T_{ref}$ [K]	473	463
<b>Coefficient de piezodépendance</b>	$\chi$ [Pa <sup>-1</sup> ]	$2 \cdot 10^{-8}$	$2 \cdot 10^{-8}$
<b>Paramètres loi WLF</b>	$C_1$	9,74	
	$C_2$ [K]	262,83	

Tableau 4-7 Paramètres du PEHD et du PMMA

En ce qui concerne les paramètres de la loi de glissement de Norton, rappelons ici les valeurs déterminées au chapitre 3, et issues de la littérature, pour le PEHD :

	$n$	$\alpha$ (Pa.s <sup><math>n</math></sup> .m <sup><math>-n</math></sup> )
<b>Nos mesures</b>	0,26	$5,7 \cdot 10^5$
<b>Hatzikiriakos et Dealy</b>	0,23	$7,4 \cdot 10^5$
<b>Ansari et al.</b>	0,17	$3,2 \cdot 10^5$

Les calculs sont assez peu sensibles au paramètre  $n$ , et nous choisissons pour la suite  $n = 0,25$ . Le choix est plus difficile pour  $\alpha$ , et nous choisissons une valeur de  $7,5 \cdot 10^5$  Pa.s <sup>$n$</sup> .m <sup>$-n$</sup> .

Pour le PMMA nous n'avons pas mis en évidence de façon claire de glissement à la paroi en rhéologie expérimentale. Nous allons tout de même introduire un glissement. Le but est de voir comment ses effets se combinent aux autres, et en particulier à la forte thermodépendance de ce polymère.

Nous choisissons arbitrairement les constantes suivantes :  $n = 0,2$  et  $\alpha = 10^6 \text{ m.s}^{-n}.\text{Pa}^{-n}$ , pour avoir un glissement minimum

Nous travaillons à débit constant, ici choisi égal à  $628 \text{ mm}^3\text{s}^{-1}$ , ce qui donne un taux de cisaillement apparent de  $5.10^5 \text{ s}^{-1}$ . Ces valeurs ont été utilisées dans les tests rhéologiques expérimentaux.

La condition aux limites thermique est en flux avec un coefficient de transfert thermique  $h_T$  de  $500 \text{ W}/(\text{m}^2\text{K})$ .

#### 4.4.2 Calcul avec une viscosité thermodépendante

Le calcul est incompressible sans glissement avec une viscosité qui ne dépend pas de la pression. Nous ne prenons donc en compte que la thermodépendance et l'échauffement du polymère.

##### a) PEHD

Nous traçons les profils de vitesse à quatre positions le long du capillaire, Figure 4-13. Nous superposons à ces courbes celle du champ de vitesse calculé analytiquement à partir d'une formule d'écoulement simple de type poiseuille tube pseudoplastique en loi puissance selon la formule :

$$v(r) = \frac{3m+1}{m+1} \left( 1 - \left( \frac{r}{R} \right)^{\frac{m+1}{m}} \right)^m$$

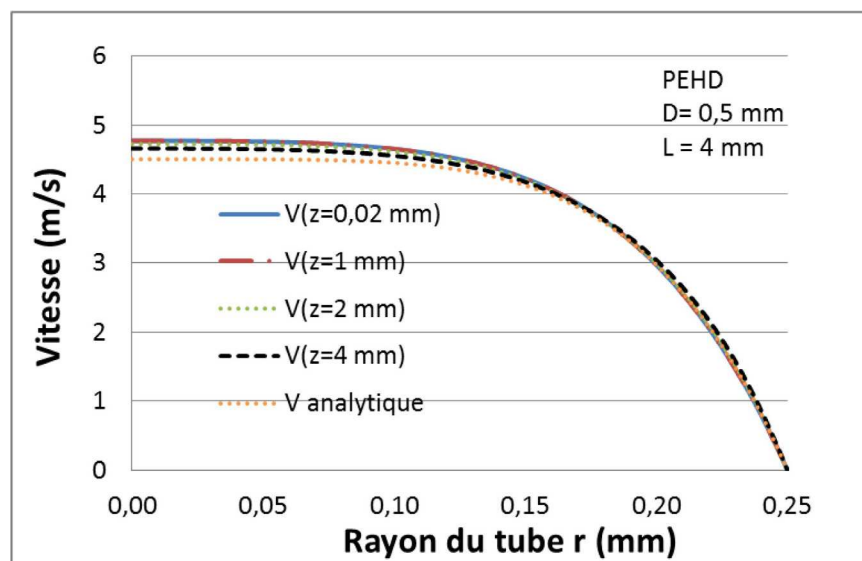
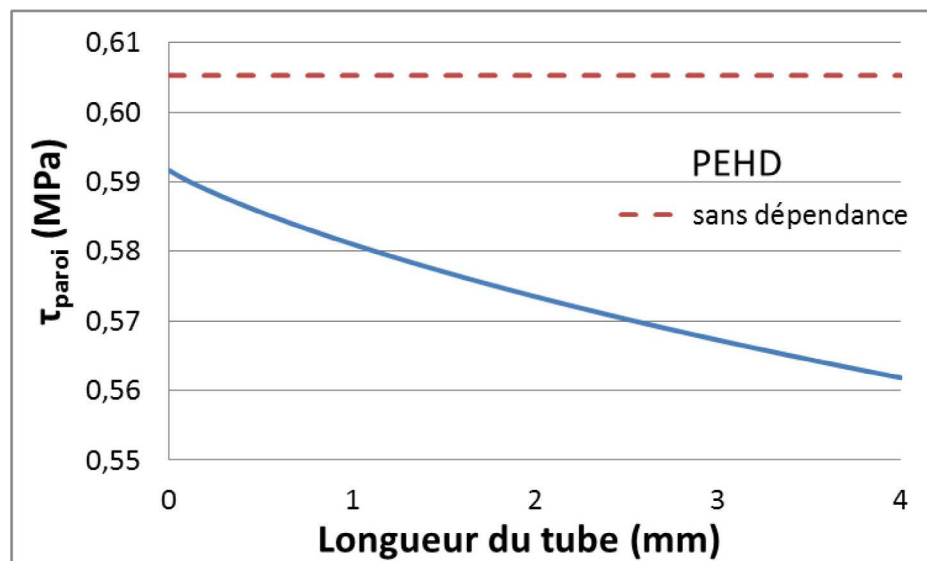


Figure 4-13 : Champs de vitesses à quatre positions le long du capillaire, viscosité thermodépendante, PEHD.



Nous remarquons que les écarts entre les champs de vitesses entre l'entrée du tube et son extrémité sont négligeables. L'écart avec la valeur analytique est faible également, ce qui veut dire d'une part que la thermodépendance perturbe assez peu ce profil, et d'autre part qu'à fort taux de cisaillement, la loi puissance donne des résultats similaires à la loi de Carreau.

Nous traçons l'évolution de la contrainte à la paroi  $\tau_p(z)$ , produit de la viscosité et du taux de cisaillement, le long de la filière, Figure 4-14.



**Figure 4-14 : Courbe de l'évolution de la contrainte à la paroi en fonction de la longueur du tube, viscosité thermodépendante, PEHD**

Nous étudions également l'évolution de la pression le long du tube et nous la comparons à celle de la pression calculée analytiquement en condition isotherme.

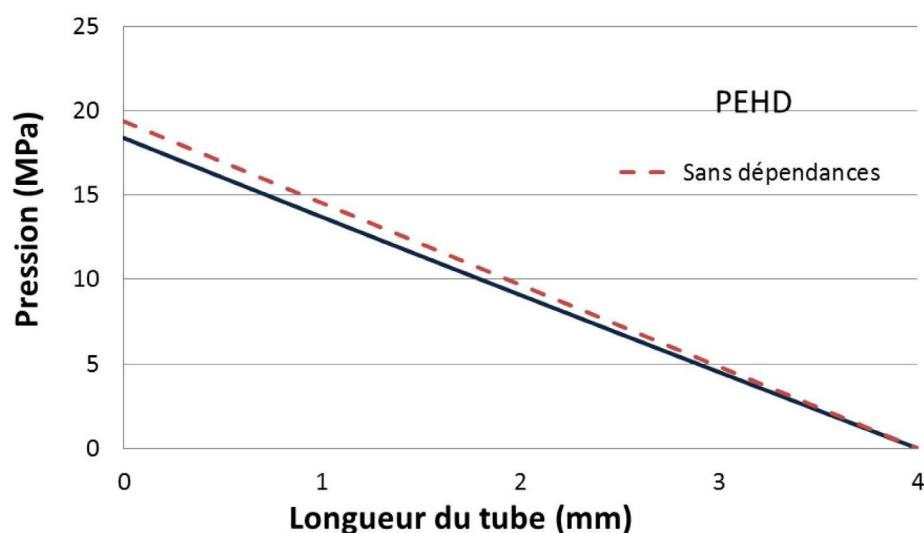


Figure 4-15 : Courbe d'évolution de la pression, viscosité thermodépendante pour le PEHD.

La prise en compte de la thermodépendance a pour effet de baisser la valeur de la pression dans le tube. Cette évolution est en effet prévisible, car le fait de tenir compte de la dissipation de chaleur diminue la viscosité du polymère et donc la valeur de la pression à l'entrée du tube. Nous remarquons aussi que l'évolution de la courbe « sans dépendance » est linéaire, alors que la courbe avec une thermodépendance est légèrement courbée. Ceci est dû à l'évolution de la température le long du tube.

L'écart entre les deux valeurs de pression à l'entrée du tube pour le PEHD est de 5 %. La sensibilité du PEHD à l'effet de la température n'est pas très importante.

L'évolution de la température suivant le rayon du tube pour différentes positions le long de celui-ci est présentée, Figure 4-16.

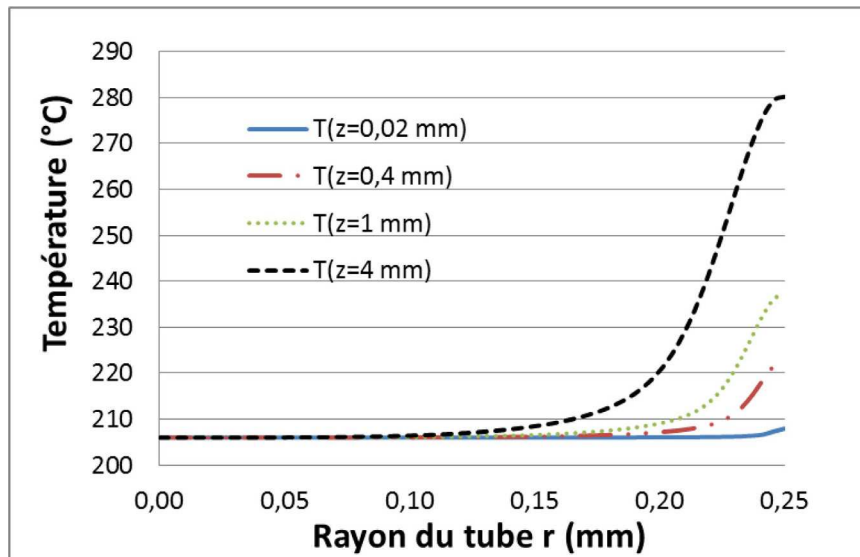


Figure 4-16 : Courbes de température en fonction du rayon du tube pour quatre positions le long du tube ( $z = 0,02 \text{ mm}$ ,  $z = 0,4 \text{ mm}$ ,  $z = 1 \text{ mm}$  et  $z = 4 \text{ mm}$ ). Cas thermodépendant, PEHD.

La température à la paroi au bout du tube augmente de  $74 \text{ }^{\circ}\text{C}$  par rapport à la température d'entrée du polymère. Les échauffements en paroi peuvent paraître élevés. Notons que le temps de séjour moyen dans le capillaire est de  $0,001 \text{ s}$ , (suivant  $t = \frac{L}{\dot{V}} = \frac{L}{Q} \frac{\pi \phi^2}{4} = \frac{4 \cdot 0,25^2}{628}$ ). Dans ces conditions, la dégradation de la matière devrait être négligeable. Nous pouvons tout de même mettre en cause l'hypothèse d'un écoulement stationnaire établi, purement visqueux. En effet, nous avons vu au paragraphe 3.3.3.1 à forte vitesse que la pression ne s'établit pas instantanément.

### ***b) PMMA***

Nous présentons les courbes des champs de vitesse calculées à différentes positions le long du tube, Figure 4-18. Nous avons cette fois des évolutions notables le long du tube.

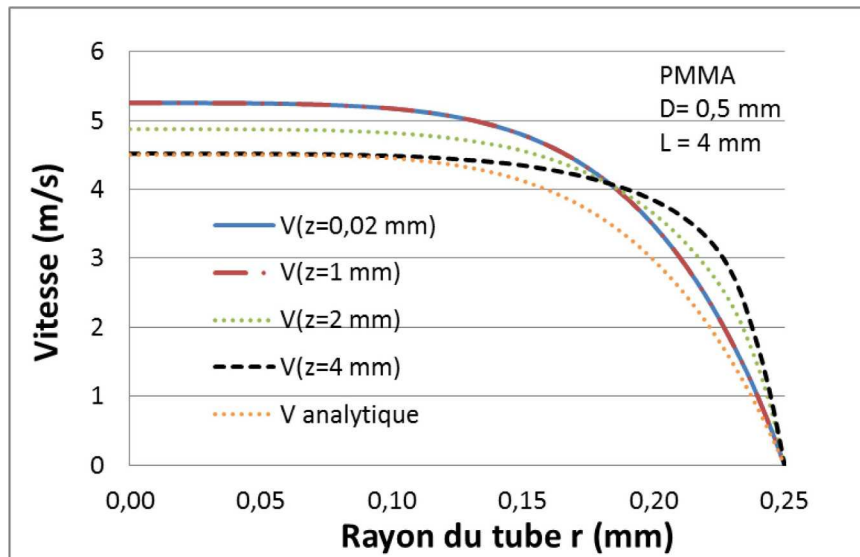


Figure 4-17 : Champs de vitesses à quatre positions le long du capillaire, viscosité thermodépendante, PMMA.

Nous présentons les évolutions de la contrainte à la paroi et de la pression en fonction de la longueur du tube, respectivement par la Figure 4-18 et la Figure 4-19.

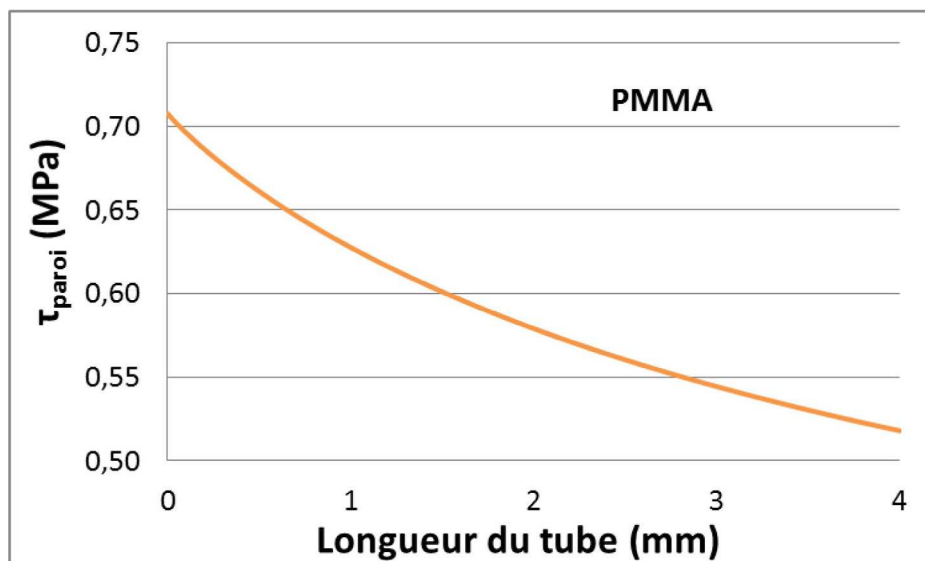


Figure 4-18 : Courbe de l'évolution de la contrainte à la paroi en fonction de la longueur du tube, viscosité thermodépendante, PMMA

Pour un taux de cisaillement apparent égal, le PEHD présente une contrainte à la paroi sensiblement moins grande que celle du PMMA. Ce dernier matériau, aux températures de transformation choisies, est plus visqueux que le PEHD. La contrainte à la paroi en isotherme

(appelée « sans dépendance ») n'apparaît pas pour le PMMA, car elle est hors échelle, elle vaut 1 MPa.

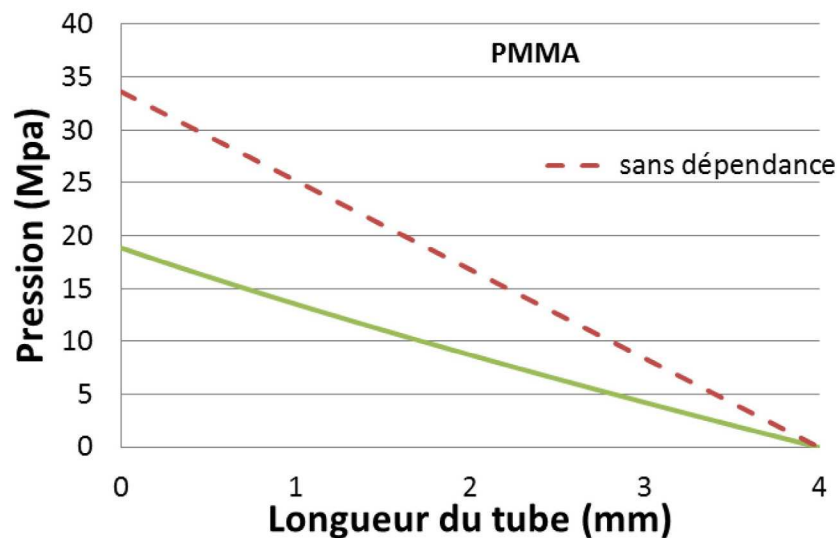


Figure 4-19 : Courbe d'évolution de la pression, viscosité thermodépendante pour le PMMA.

Dans le cas du PMMA, l'écart entre les pressions d'entrée « sans dépendance» et avec viscosité thermodépendante est de 82,5 %. Ce résultat peut s'expliquer par la forte sensibilité de la viscosité à la température. En effet, ce matériau a une énergie d'activation de 177 kJ/mole beaucoup plus élevée que celle du PEHD, de 9 kJ/mole.

La Figure 4-20 présente l'évolution de la température suivant le rayon du tube pour le PMMA. L'écart entre la température d'entrée et la température à la paroi à l'extrémité du tube est de 91 °C.

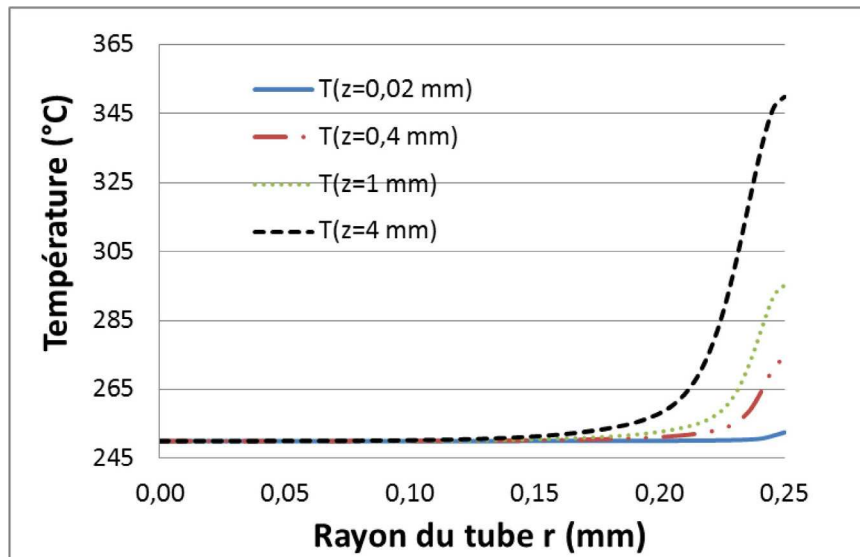


Figure 4-20 : Courbes de température en fonction du rayon du tube pour quatre positions le long du tube ( $z=0,02$  mm,  $z=0,3$  mm,  $z=1$  mm et  $z=4$  mm). Cas thermodépendant, PMMA.

#### 4.4.3 Calcul compressible, piezo- et thermo- dépendant

Nous tenons compte des thermo- et piezo- dépendances de la viscosité pour un écoulement compressible et sans glissement à la paroi.

Nous présentons les mêmes résultats que précédemment dans le cas du PEHD puis dans le cas du PMMA.

##### a) PEHD

La Figure 4-21 présente les évolutions des champs de vitesses dans le capillaire. La Figure 4-22 et la Figure 4-23 montrent les évolutions de la contrainte à la paroi et de la pression en fonction de la longueur du tube pour le PEHD.

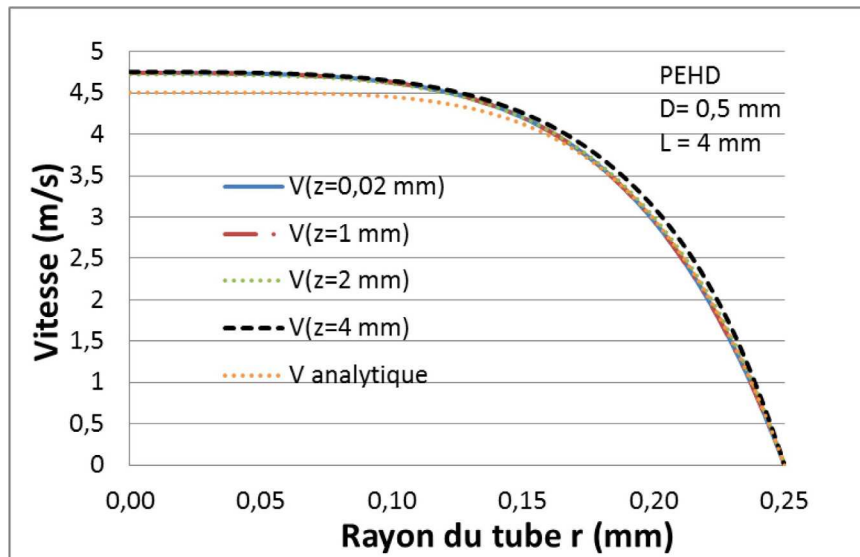


Figure 4-21 : Champs de vitesses, cas compressible, thermo- et piezo- dépendant, PEHD.

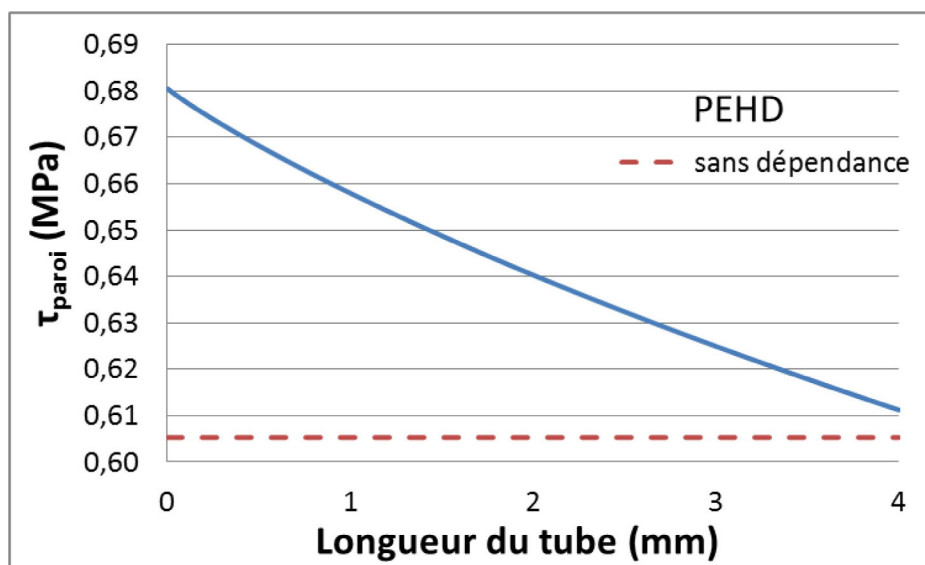


Figure 4-22 : Courbe de l'évolution de la contrainte  $\tau_{\text{paroi}}$  en fonction de la longueur du tube, cas compressible, thermo- et piezo- dépendant, PEHD.

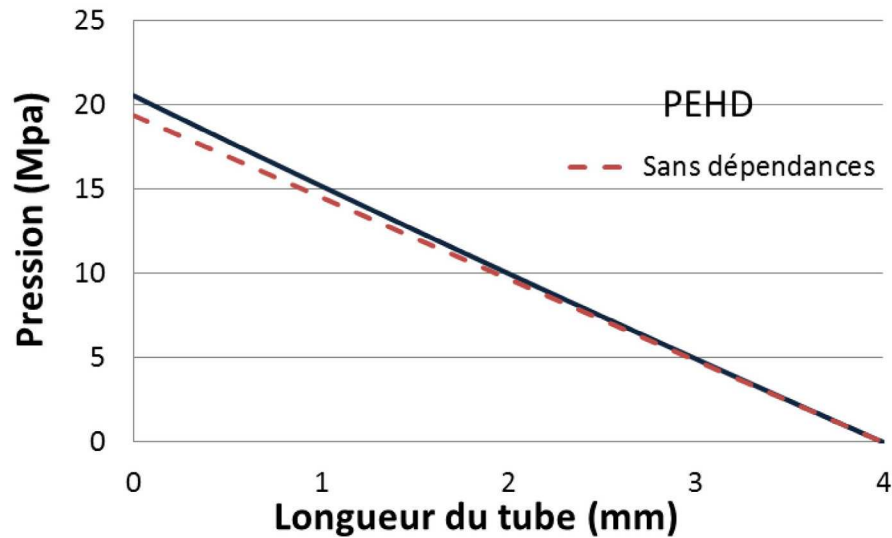


Figure 4-23 : Courbe de l'évolution de la pression en fonction de la longueur du tube, cas compressible, thermo- et piezo- dépendant, PEHD.

Nous remarquons que la courbe de pression calculée en tenant compte de la compressibilité, des thermo- et piezo- dépendances passe au-dessus de celle sans dépendance. En effet, la valeur de la pression en entrée du tube est de 21,73 MPa, elle est supérieure à celle du cas sans dépendance qui est de 19,37 MPa. L'écart entre les deux valeurs est de 11 %.

L'impact de la piezodépendance (augmentation de  $\eta$  avec  $p$ ) l'emporte sur celui de la thermodépendance (diminution de  $\eta$  avec  $T$ ).

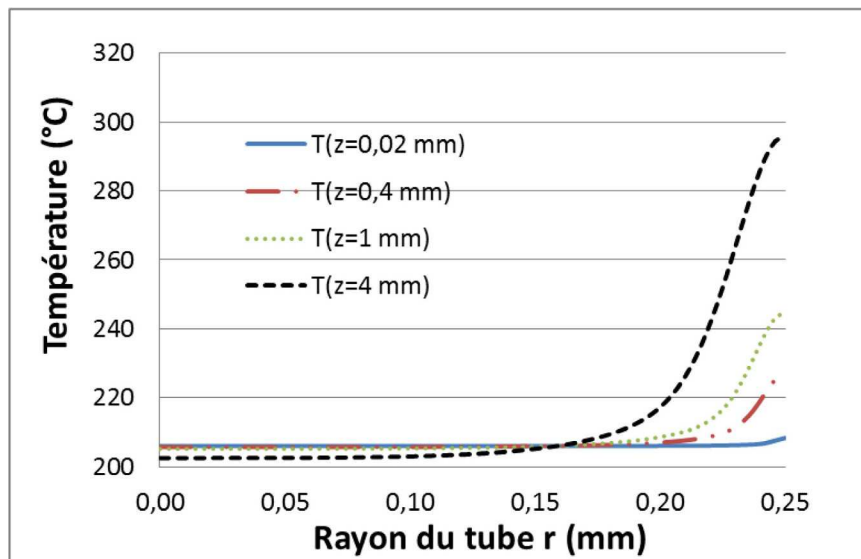


Figure 4-24 : Courbes de température en fonction du rayon du tube pour quatre positions le long du tube ( $z = 0,02$  mm,  $z = 0,3$  mm,  $z = 1$  mm et  $z = 4$  mm). Cas compressible, thermo- et piezo- dépendant, PEHD.



La Figure 4-24 présente les profils de température selon le rayon pour différentes positions le long du tube. L'écart de température à la paroi entre l'entrée et le bout du tube est de 76 °C. Toutefois, vu le débit employé ( $Q = 6,3 \cdot 10^{-7} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ , soit  $\dot{V} = 3,2 \text{ m/s}$ ), ce résultat est cohérent. Au centre du tube, la température à l'extrémité ( $z = 4 \text{ mm}$ ) est inférieure à la température d'entrée de quelques degrés (3,5 °C). Ceci est dû au fait que, dans l'équation de la chaleur (paragraphe 4.1.2), le terme  $\frac{\partial p}{\partial z}$  est négatif, et comme loin de la paroi le taux de cisaillement et donc la puissance dissipée sont très faibles, ce terme est dominant. C'est l'introduction de la piezodépendance et de la compressibilité dans l'équation de la chaleur qui induisent cette diminution de la température au centre.

### b) PMMA

Les évolutions respectives de la contrainte à la paroi, de la pression et des températures sont présentées par la Figure 4-25 et la Figure 4-26.

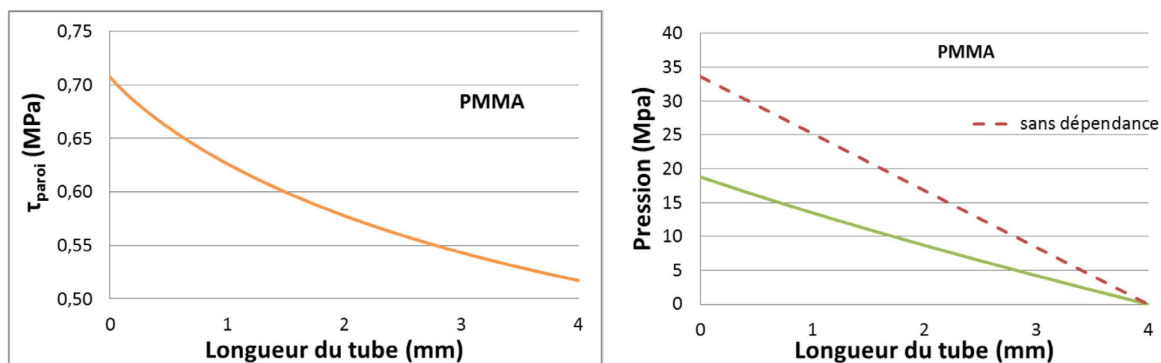


Figure 4-25 : Courbe d'évolution de la contrainte à la paroi (à gauche) et courbe d'évolution de la pression (à droite), cas compressible, thermo- et piezodépendant, PMMA.

La valeur de la pression en entrée du tube dans le cas compressible, thermo- et piezo-dépendant est de 18,82 MPa. Elle est largement en dessous de celle dans le cas sans dépendance, qui est de 33,62 MPa. Contrairement au PEHD, c'est la diminution de la viscosité avec l'augmentation de  $T$ , via une forte thermodépendance, qui est prédominante sur le comportement de la matière pour le PMMA.

La valeur de la pression d'entrée dans le cas thermodépendant uniquement est de 18,85 MPa. Elle est légèrement supérieure à 18,82 MPa, la valeur que nous venons de relever pour le cas compressible thermo- et piezo- dépendant, bien que nous nous attendions au résultat contraire.

Une explication à cette variation est que la compressibilité diminue la pression en entrée également. Pour le vérifier, nous réalisons un calcul thermo- et piezo- dépendant non compressible. Nous trouvons une pression en entrée du tube de 19,03 MPa. Ce test confirme notre hypothèse de l'effet atténuateur sur la pression de la compressibilité dans le cas du PMMA. Notons toutefois que les écarts sont assez faibles. Les couplages entre les différents phénomènes physiques est donc complexe et les effets sont variables selon le polymère.

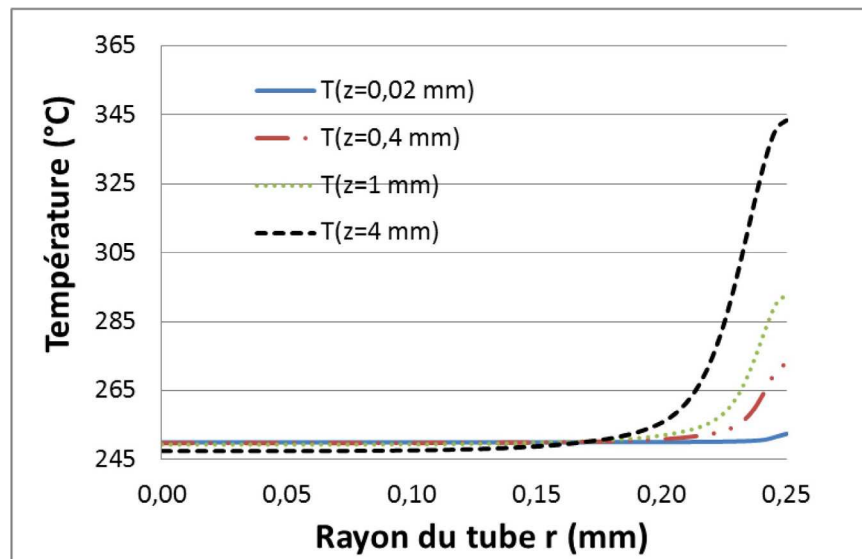


Figure 4-26 : Courbes de température en fonction du rayon du tube pour quatre positions le long du tube ( $z= 0,02 \text{ mm}$ ,  $z= 0,3 \text{ mm}$ ,  $z=1 \text{ mm}$  et  $z= 4 \text{ mm}$ ). Cas compressible, thermo- et piezo- dépendant, PMMA.

L'évolution de la température reste semblable à celle du cas avec thermodépendance uniquement.

#### 4.4.4 Incidence du glissement à la paroi

Nous tenons compte, en plus des dépendances précédentes, du glissement à la paroi.

##### a) PEHD

Les graphes de la Figure 4-27, la Figure 4-28 et la Figure 4-29 montrent les résultats dans le cas compressible, thermo et piezo- dépendant avec glissement à la paroi.

La valeur de la pression en entrée du tube dans ce cas est presque superposée avec celle du cas sans dépendance. Dans ce cas précis (rhéologie, loi de glissement, débit), les phénomènes

s'annulent. Dans le cas compressible, thermo- et piezo-dépendant, la pression en entrée est de 19,83 MPa avec glissement, alors que sans glissement, nous avons 21,73 MPa.

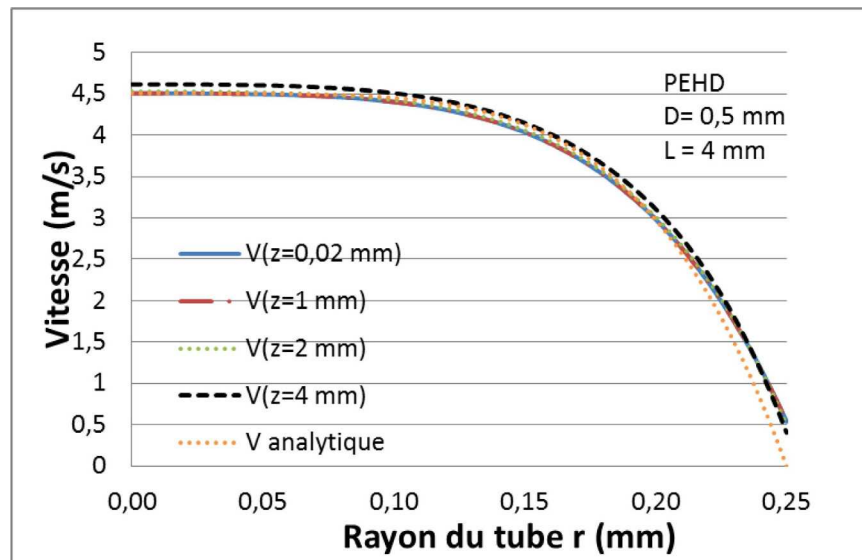


Figure 4-27 : Champs de vitesses, , cas compressible, thermo- et piezo- dépendant avec glissement, PEHD.

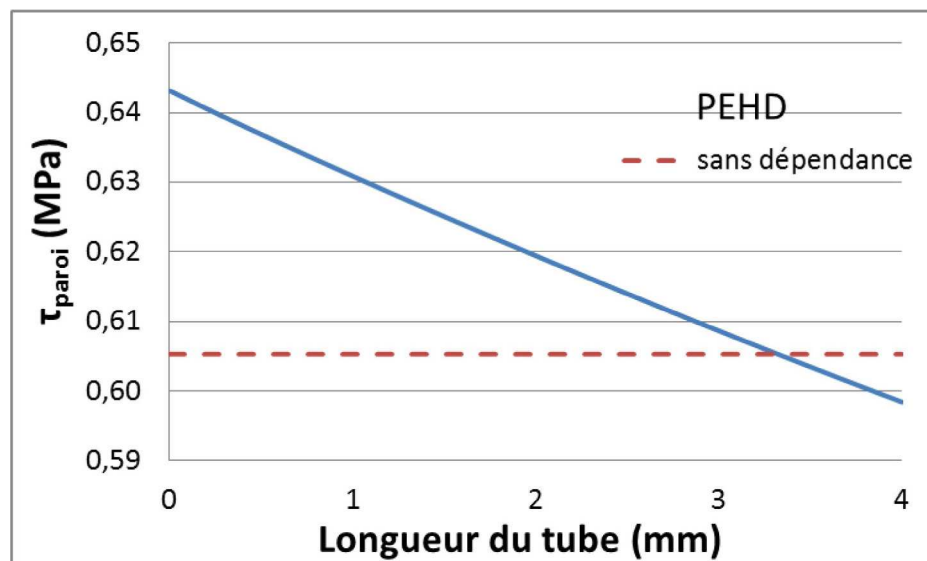


Figure 4-28 : Courbe d'évolution de la contrainte à la paroi , cas compressible, thermo- et piezo- dépendant avec glissement, PEHD.

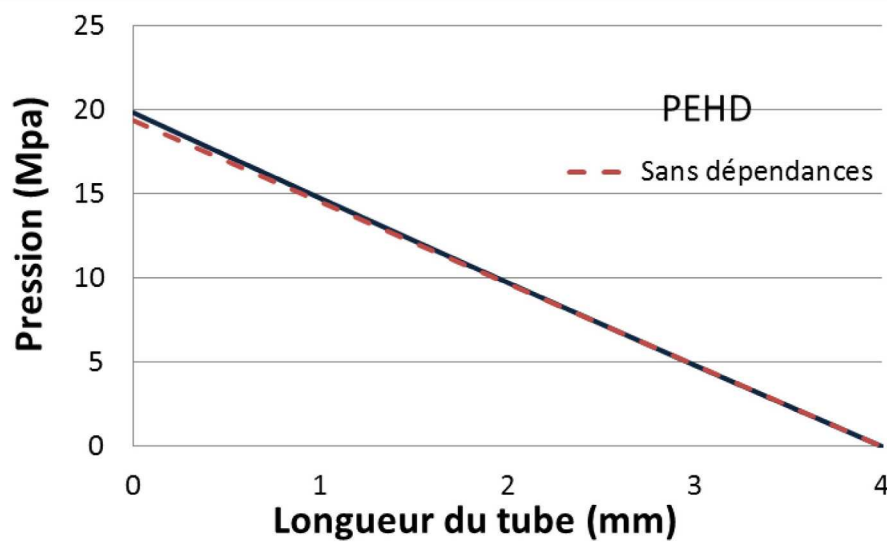


Figure 4-29 : Courbe d'évolution de la pression, cas compressible, thermo- et piezo- dépendant avec glissement, PEHD.

La Figure 4-30 montre l'évolution de la vitesse de glissement le long du tube et l'écart relatif à la vitesse moyenne. Le calcul montre que la vitesse de glissement évolue entre 17 % et 12 % de la vitesse moyenne. Elle est donc non négligeable, mais nous avons vu au paragraphe 4.3.2.4 que l'effet sur la pression est relativement faible.

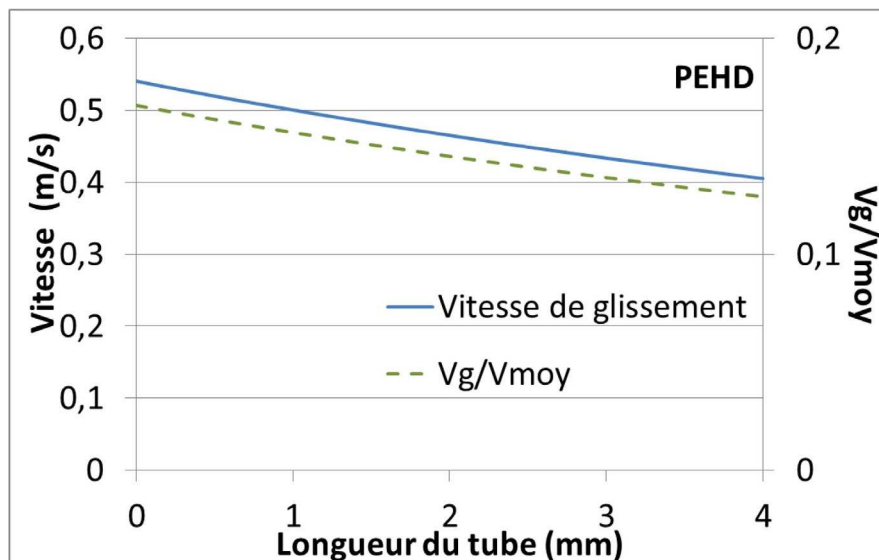


Figure 4-30 : Courbe de l'évolution de la vitesse de glissement et du rapport de la vitesse du glissement par la vitesse moyenne le long du tube, PEHD.

Faute de pouvoir déterminer une loi de glissement réaliste, nous avons dépouillé nos données rhéologiques en ignorant le glissement, mais aussi tous les autres phénomènes. Les calculs montrent que cette démarche est par chance valable. Cette conclusion ne doit pas être généralisée.

Pour affiner ce résultat, nous réalisons des calculs à deux autres débits,  $6283 \text{ mm}^3\text{s}^{-1}$  et  $20106 \text{ mm}^3\text{s}^{-1}$ , soit les taux de cisaillement apparents respectifs de  $5,12 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$  et  $16,4 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$ . Les courbes de pressions sont données par la Figure 4-31.

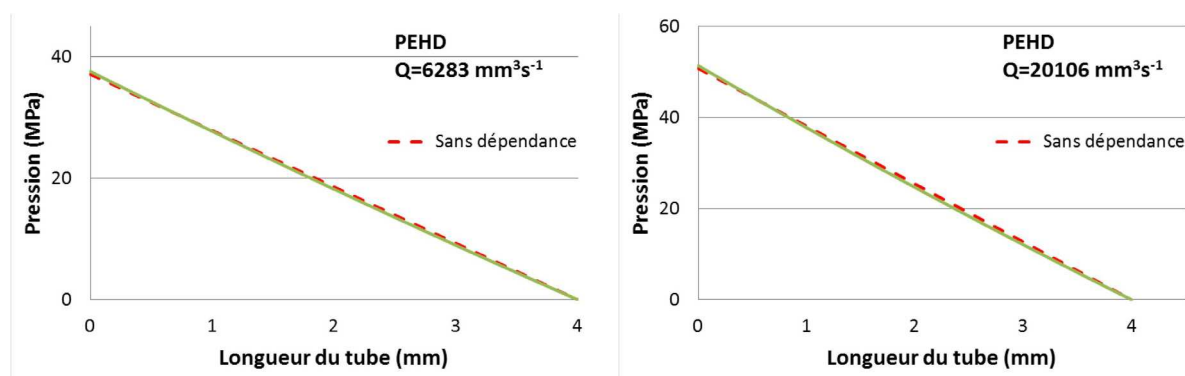


Figure 4-31 : Courbes de l'évolution de la pression pour différents débits.

Cas compressible thermo- et piezo- dépendant avec glissement, PEHD.

Nous remarquons, que même en augmentant le débit, l'écart entre les pressions d'entrée avec le cas « sans dépendance » reste relativement faible. La courbe de pression est légèrement au-dessus du cas de référence en entrée du tube, puis passe au-dessous de la pression de référence, là où la température augmente considérablement et a tendance à diminuer la viscosité.

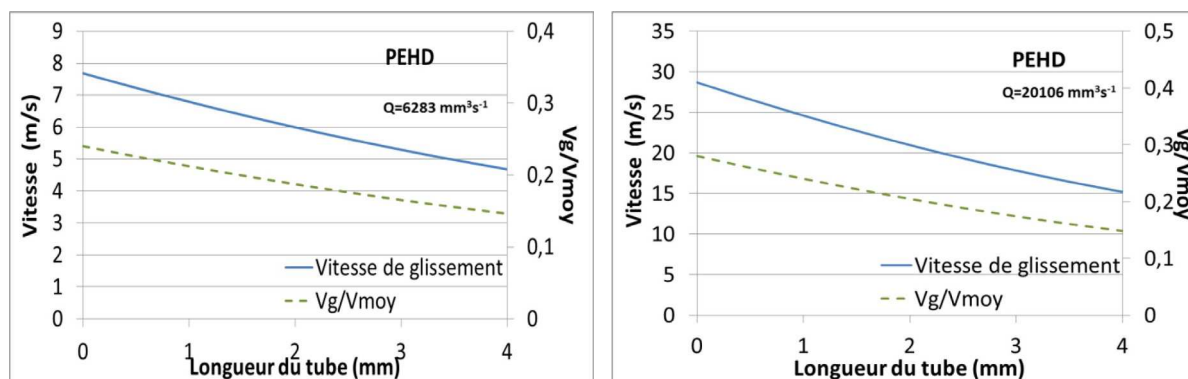


Figure 4-32 : Courbes de l'évolution de la vitesse de glissement pour différents débits.

Cas compressible thermo- et piezo- dépendant avec glissement, PEHD.

Dans le cas des débits de 6283 et 20106 mm<sup>3</sup>s<sup>-1</sup>, la vitesse moyenne est respectivement de 32 et 102 m.s<sup>-1</sup>. La valeur de glissement maximale calculée est de 7,7 et 28,7 m.s<sup>-1</sup>, d'où les rapports  $V_g/V$  de 0,24 et 0,28 respectifs. Quand le débit augmente, compte tenu de la loi de Norton, la vitesse de glissement augmente, mais l'augmentation est moins importante en proportion que celle de la vitesse moyenne.

Revenant au débit de 630 mm<sup>3</sup>/s, la Figure 4-33, montre que la température augmente de 63 °C à la paroi entre l'entrée et l'extrémité du tube. Cette valeur est inférieure à celles déterminées dans les deux configurations précédentes (sans dépendance, et avec toute dépendance sauf le glissement). Le glissement à la paroi aurait pour effet de faire décroître l'autoéchauffement dans le tube. Il est à noter que nous n'avons pas tenu compte de la puissance dissipée par le frottement, qui conduit à une création d'énergie qui va pour la plus grande partie dans le capillaire et pour une partie plus faible, dans le polymère, en raison des différences d'effusivité thermique de l'acier et du polymère. L'échauffement devrait donc être légèrement plus important que prévu dans ces calculs.

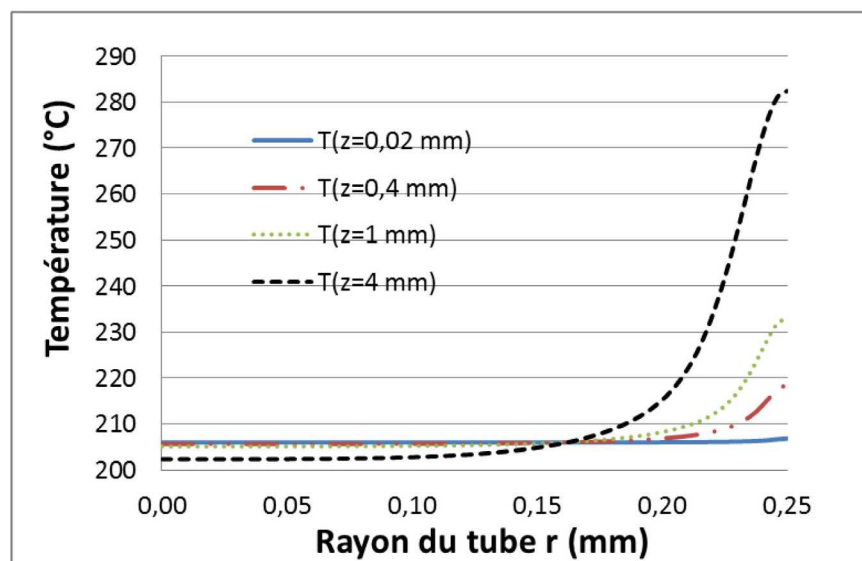


Figure 4-33 : Courbes de température en fonction du rayon du tube pour quatre positions le long du tube ( $z = 0,02 \text{ mm}$ ,  $z = 0,3 \text{ mm}$ ,  $z = 1 \text{ mm}$  et  $z = 4 \text{ mm}$ ). Cas compressible thermo- et piezo- dépendant avec glissement, PEHD.

### b) PMMA

Rappelons que nous avons décidé de tester un glissement même si les mesures rhéologiques n'étaient pas convaincantes sur ce plan.

L'évolution des profils de vitesse selon le rayon le long du tube est présentée par la Figure 4-26.

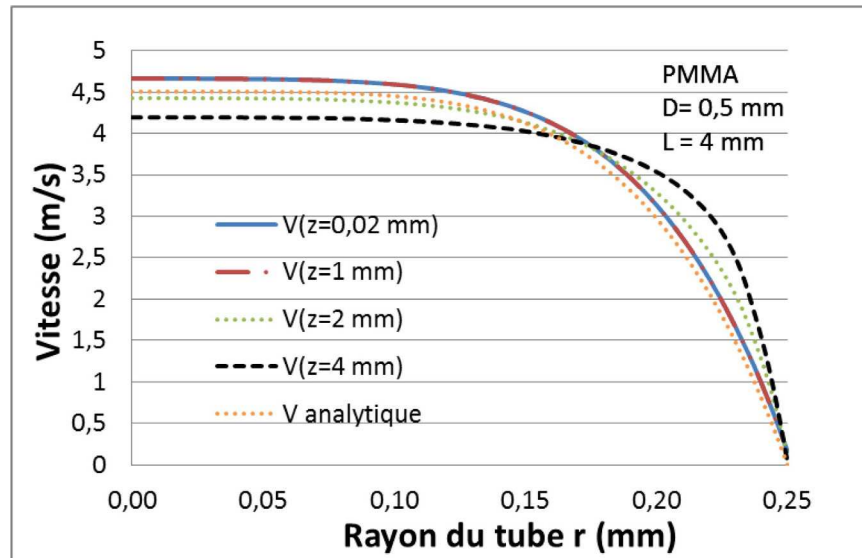


Figure 4-34 : Champs de vitesses, cas compressible, thermo- et piezo- dépendant avec glissement, PMMA.

Les courbes des résultats sont exposées par la Figure 4-35, la Figure 4-36 et la Figure 4-37 pour une loi de comportement compressible, thermo et piezo- dépendante avec glissement à la paroi.

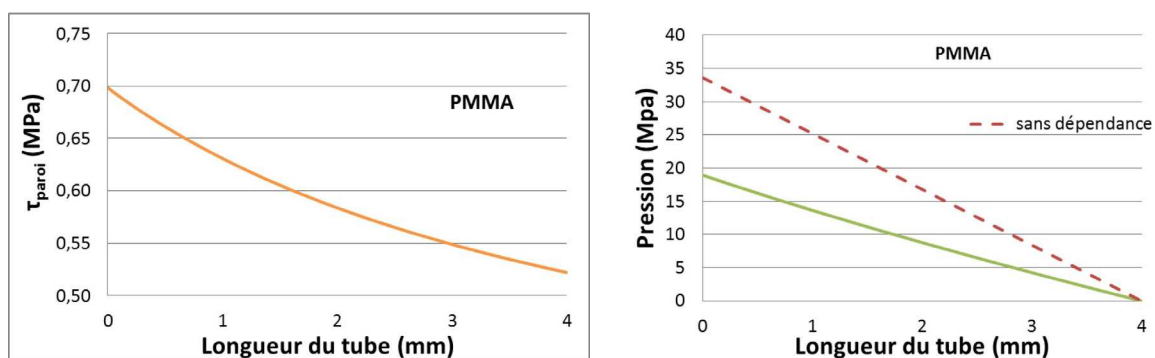


Figure 4-35 : Courbe de l'évolution de la contrainte à la paroi (à gauche) et courbe de l'évolution de la pression en fonction de la longueur du tube, PMMA.

La valeur de la pression en entrée du tube dans le cas compressible, thermo- et piezo-dépendant avec glissement est de 18,95 MPa. Elle est inférieure à celle du cas sans dépendance, mais peu différente du cas seulement thermodépendant. C'est bien la thermodépendance qui domine pour le PMMA.

Nous traçons la courbe de l'évolution de la vitesse de glissement, Figure 4-36. Le rapport de la vitesse de glissement maximale par la vitesse moyenne varie entre 5 % et moins de 2 %. Le glissement est trop faible pour changer la pression en entrée du tube. Sans glissement, nous avons 18,82 MPa, et avec glissement 18,95 MPa. Même si cette variation est très petite, nous devrions avoir une évolution de la pression dans le sens contraire.

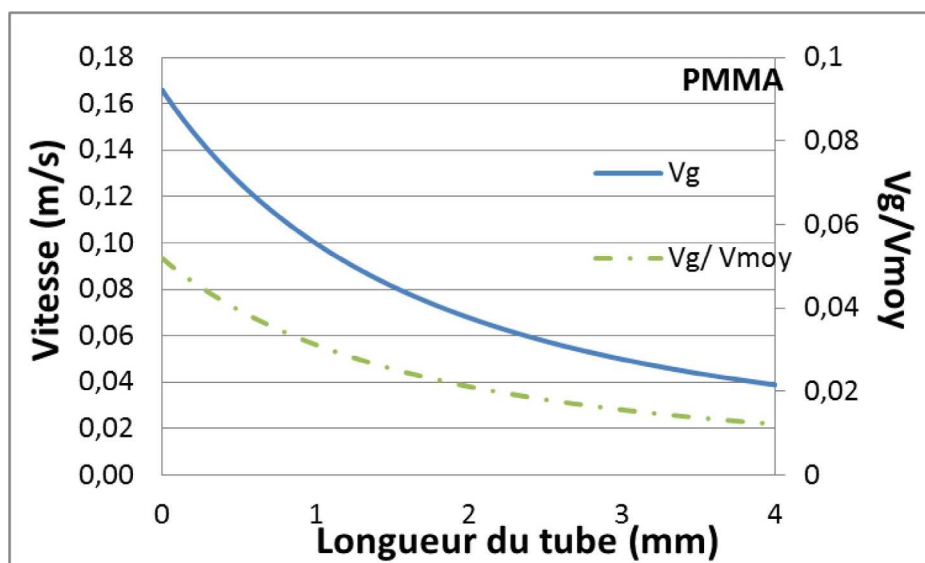


Figure 4-36 : Courbe de l'évolution de la vitesse de glissement et du rapport de la vitesse du glissement par la vitesse moyenne le long du tube, PMMA.

La température à la paroi augmente de 63 °C par rapport à la température d'entrée, Figure 4-37. Cet écart est inférieur à ceux relevés dans le cas des deux situations précédentes.



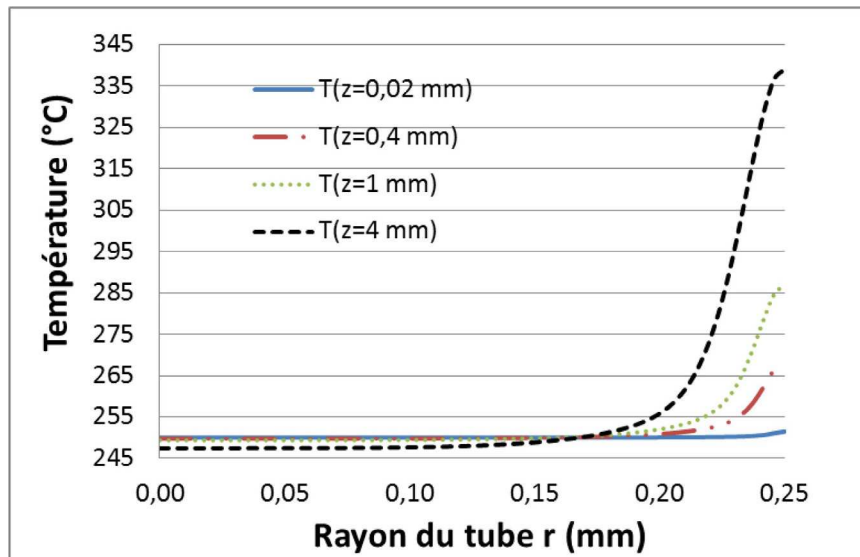


Figure 4-37 : Courbes de température en fonction du rayon du tube pour quatre positions le long du tube ( $z= 0,02 \text{ mm}$ ,  $z= 0,3 \text{ mm}$ ,  $z=1 \text{ mm}$  et  $z= 4 \text{ mm}$ ). Cas compressible thermo- et piezo- dépendant avec glissement à la paroi, PMMA.

#### 4.4.5 Récapitulatif des incidences des hypothèses

Nous récapitulons l'effet des différents paramètres sur la pression d'entrée.

##### a) PEHD

Le Tableau 4-8 et la Figure 4-38 présentent le récapitulatif des résultats pour les différentes combinaisons d'hypothèses.

Dépendances	Isotherm Non Piezo Non Comp Non glissement	Thermo Non Piezo Non Comp Non glissement	Thermo Piezo Comp Non glissement	Isotherm Piezo Comp Non glissement	Thermo Piezo Comp Glissement
Pression (MPa)	19,37	18,38	21,73	20,54	19,83
% par rapport à sans dépendance	0	-5	6	12	2

Tableau 4-8 : Récapitulatif des valeurs de pression en entrée du tube pour les différentes lois de comportement, cas du PEHD.

Les résultats de l'évolution de la pression d'entrée pour le PEHD sont cohérents. Si nous considérons une loi uniquement thermodépendante, la valeur de la pression est la plus faible.

Si nous additionnons les hypothèses de compressibilité et de piezodépendance, la pression d'entrée augmente. Enfin, en rajoutant le glissement à la paroi à la loi de comportement, la pression diminue légèrement. Dans tous les cas, la Figure 4-38 montre des profils de pression assez linéaires. Cela signifie que dans le dépouillement classique des données rhéométriques, écrire  $\tau_p = \frac{\Delta R}{2L}$  est une approximation valable.

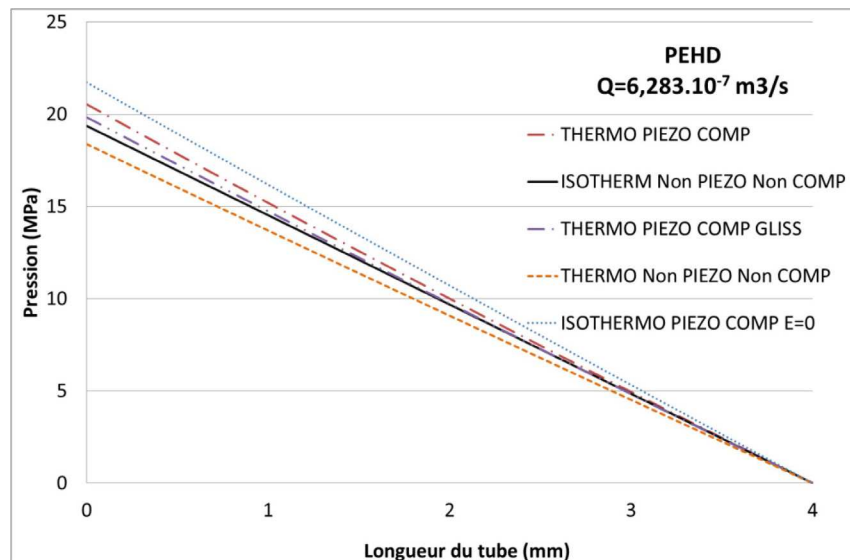


Figure 4-38 : Courbes de pression superposées pour les différentes lois de comportement, cas PEHD.

### b) PMMA

De même, nous présentons un récapitulatif de l'impact des lois de comportement sur l'évolution de la pression d'entrée, Tableau 4-9 et Figure 4-39.

Dépendances	Isotherm	Thermo	Thermo	Thermo	Thermo
	Non Piezo	Non Piezo	Piezo	Piezo	Piezo
	Non Comp	Non Comp	Non Comp	Comp	Comp
	Non glissement		Non glissement		Glissement
Pression (MPa)	33,62	18,85	19,03	18,82	18,95

Tableau 4-9 : Récapitulatif des valeurs de pression en entrée du tube pour les différentes lois de comportement, cas du PMMA.

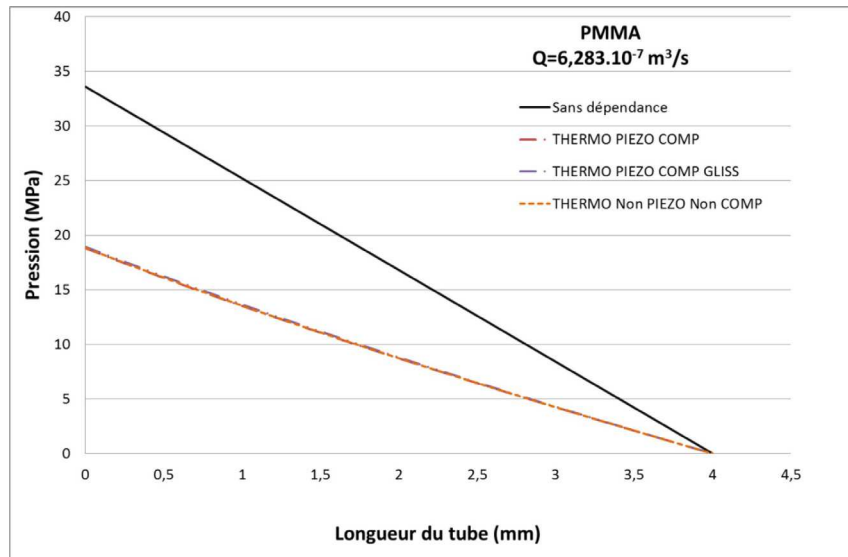


Figure 4-39: Courbes de pression superposées pour les différentes lois de comportement, cas PMMA.

La superposition des courbes de pressions confirme l'effet prépondérant de la thermodépendance. Nous remarquons également quelques incohérences sur les effets de la compressibilité et du glissement sur la valeur de la pression en entrée du tube, mais les variations sont faibles.

Les résultats précédents ont été obtenus avec une loi WLF piezodépendante. Nous allons les comparer avec une thermodépendance selon une loi d'Arrhenius et une piezodépendance exponentielle. Les courbes de pressions sont présentées ci-dessous, Figure 4-40 pour le cas thermodépendant Figure 4-41 si on rajoute la compressibilité et la piezodépendance et Figure 4-42 avec le glissement à la paroi en plus.

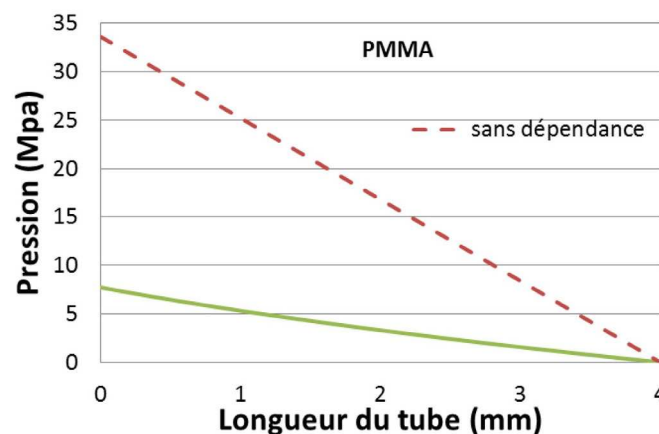


Figure 4-40: Courbe d'évolution de la pression, viscosité thermodépendante Arrhenius-Barus, PMMA.

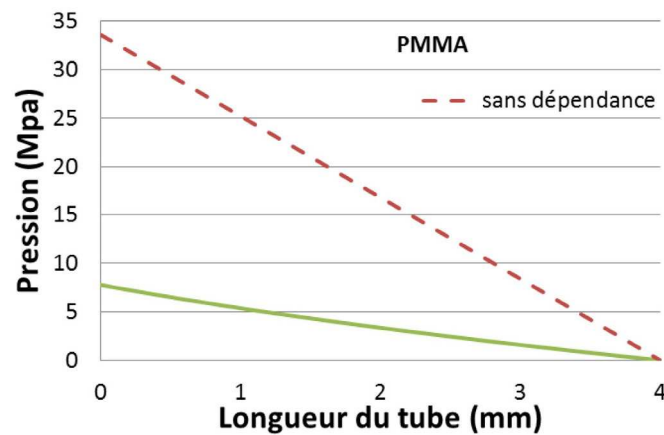


Figure 4-41 : Courbe de l'évolution de la pression, cas compressible, thermo- et piezo- dépendant selon Arrhenius-Barus, PMMA

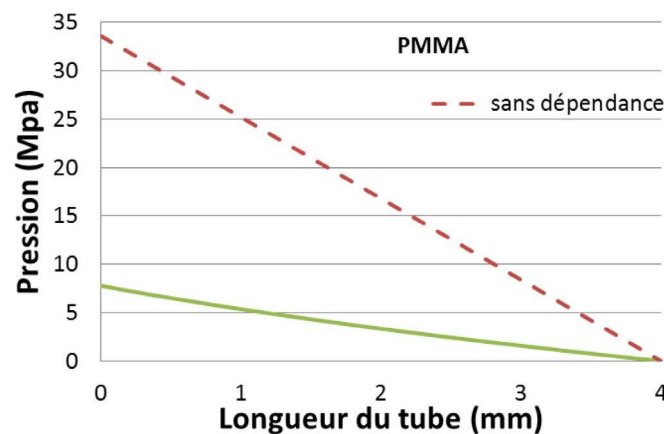


Figure 4-42 : Courbe de l'évolution de la pression, cas compressible, thermo- et piezo- dépendant (Arrhenius-Barus) avec glissement à la paroi, PMMA.

La valeur de la pression à l'entrée du tube pour le cas sans dépendance reste inchangée. Les valeurs de pression avec les dépendances sont légèrement différentes de celles précédemment étudiées, mais nous avons la même influence des différentes hypothèses, Tableau 4-10. En effet, le facteur de glissement selon les deux lois Arrhenius et WLF donne la même viscosité pour une gamme de température expérimentale comprise entre 140 et 200 °C. Ici la température à la paroi augmente jusqu'à 300 °C, ce qui fait baisser plus la pression par le facteur de glissement suivant Arrhenius que par celui de WLF.

La Figure 4-43 montre la superposition des courbes de pression pour les différentes lois de comportement et confirme les conclusions à propos de l'effet de la thermodépendance sur le PMMA.

Dépendances	Isotherm Non Piezo Non Comp	Isotherm Piezo Comp	Thermo Non Piezo Non Comp	Thermo Piezo Non Comp	Thermo Piezo Comp	Thermo Piezo Comp
	Non glissement		Non glissement		Glissement	
Pression (MPa)	33,62	34,21	7,72	7,78	7,78	7,78

Tableau 4-10 : Récapitulatif des valeurs de pression en entrée du tube pour les différentes lois de comportement, cas du PMMA avec une thermodépendance en loi d'Arrhenius.

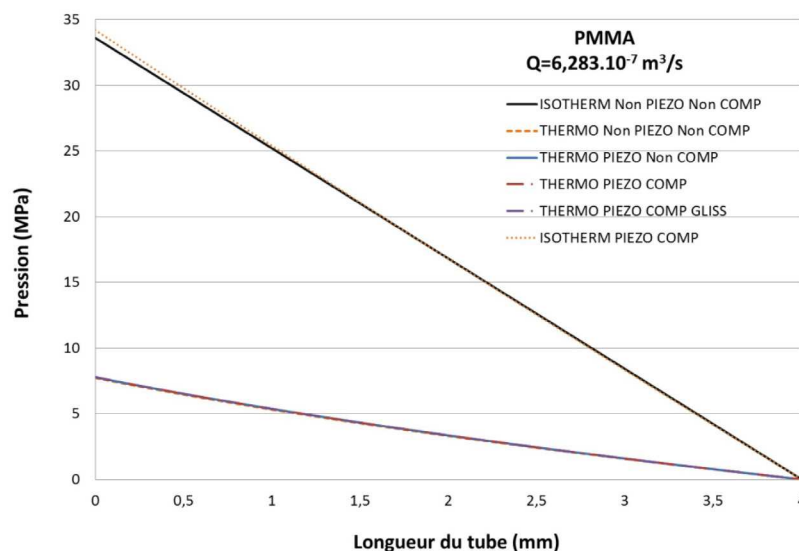


Figure 4-43 : Courbes de pression superposées pour les différentes lois de comportement se basant sur une loi Arrhenius, cas PMMA.

## 4.5 Analyse des essais rhéologiques

Nous déterminons par le calcul les courbes d'écoulement en utilisant la valeur moyenne de la contrainte définie par  $\tau = \frac{\Delta P R}{2L}$  (nous avons comparé cette valeur à celle de la moyenne de la contrainte, puisque l'on a son évolution le long du capillaire, et nous avons obtenu des valeurs très proches), et la valeur du taux de cisaillement apparent définie par

$\frac{4Q}{\pi R^3} = \frac{4Q}{\pi R^3}$  pour différentes valeurs de  $Q$  Trois longueurs de filières sont utilisées, pour des rapports  $L/D$  de 4, 8 et 16 avec  $R = 0,25$  mm.

#### a) PEHD

Les paramètres matériaux ont été définis au paragraphe 4.4.1. Les débits étudiés évoluent suivant le Tableau 4-11.

Débit ( $\text{mm}^3\text{s}^{-1}$ )	20,10	201,06	628,3	2010,6	6283	20106
Taux de cisaillement apparent ( $\text{s}^{-1}$ )	$1,64 \cdot 10^3$	$1,64 \cdot 10^4$	$5,12 \cdot 10^4$	$1,64 \cdot 10^5$	$5,12 \cdot 10^5$	$1,64 \cdot 10^6$

Tableau 4-11 : Valeur de débits pour les tests rhéologique

Les graphes de la Figure 4-44 présentent les courbes d'écoulement calculées dans un cas compressible, thermo- et piezo- dépendant avec glissement à la paroi pour le PEHD.

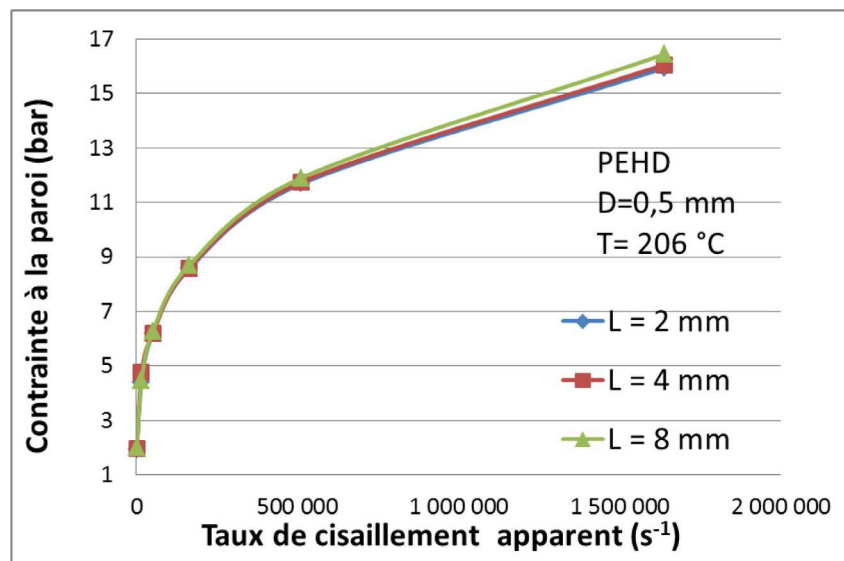
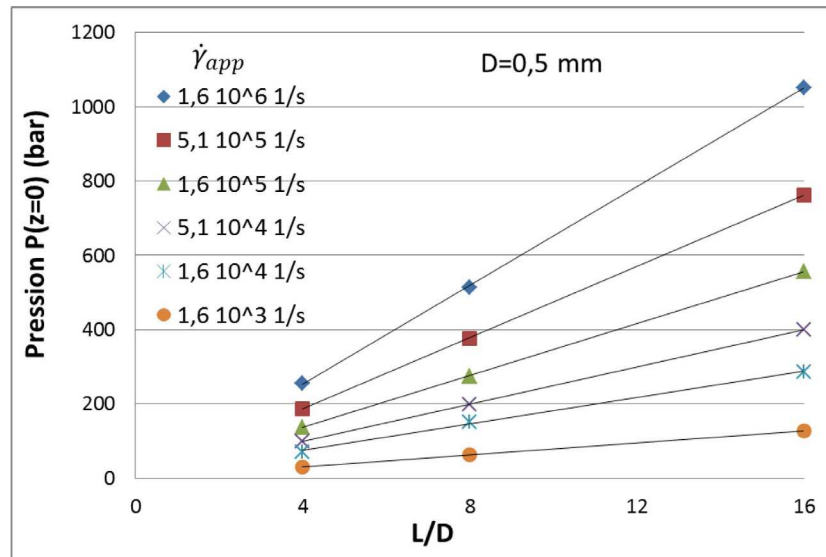


Figure 4-44 : Courbes d'écoulement, cas compressible, thermo- et piezo- dépendant avec glissement à la paroi, PEHD.

Les courbes de la contrainte à la paroi en fonction du taux de cisaillement sont légèrement écartées car il y a un petit glissement par rapport à la vitesse moyenne qui est plus visible sur les points à fort taux de cisaillement.

La Figure 4-45 présente la perte de charge dans le capillaire en fonction du rapport  $L/D$  pour les différents débits. Ces courbes s'apparentent aux courbes de Bagley, à la pression d'entrée

près, nous les appelons pseudo courbes de Bagley. Les courbes sont quasiment linéaires et nous n'observons pas aux forts cisaillements des droites parallèles qui traduisent un effet de glissement à la paroi.



**Figure 4-45 : Pseudos courbes de Bagley, cas compressible, thermo- et piezo- dépendant avec glissement à la paroi, diamètre 0,5 mm, PEHD.**

La Figure 4-46 et la Figure 4-47 présentent les courbes d'écoulement et les pseudos courbes de Bagley calculés dans un cas de loi incompressible isotherme non piezodépendante et sans glissement pour le PEHD. Notons que ce résultat ne peut être obtenu analytiquement avec une loi Carreau Yasuda.

Les courbes de la moyenne de la contrainte à la paroi en fonction du taux de cisaillement apparent se superposent parfaitement pour les différentes longueurs de capillaires, ce qui est attendu en l'absence de glissement.

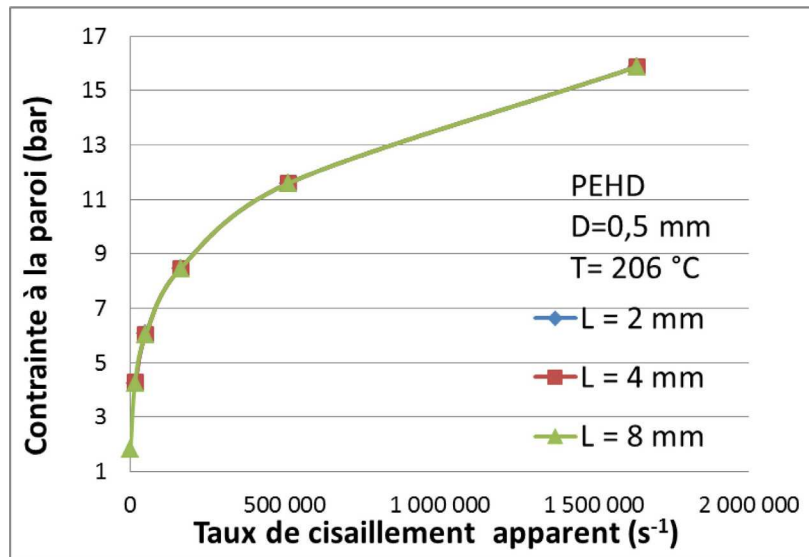


Figure 4-46 : Courbes d'écoulement, cas sans dépendance, PEHD.

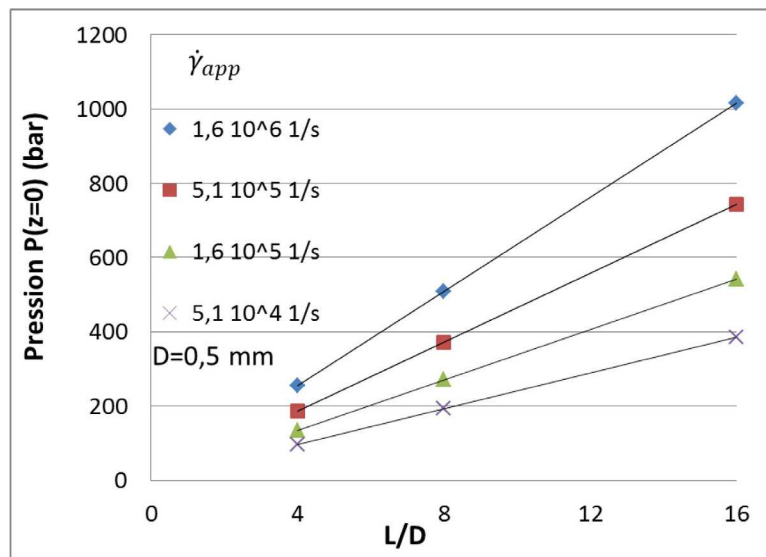


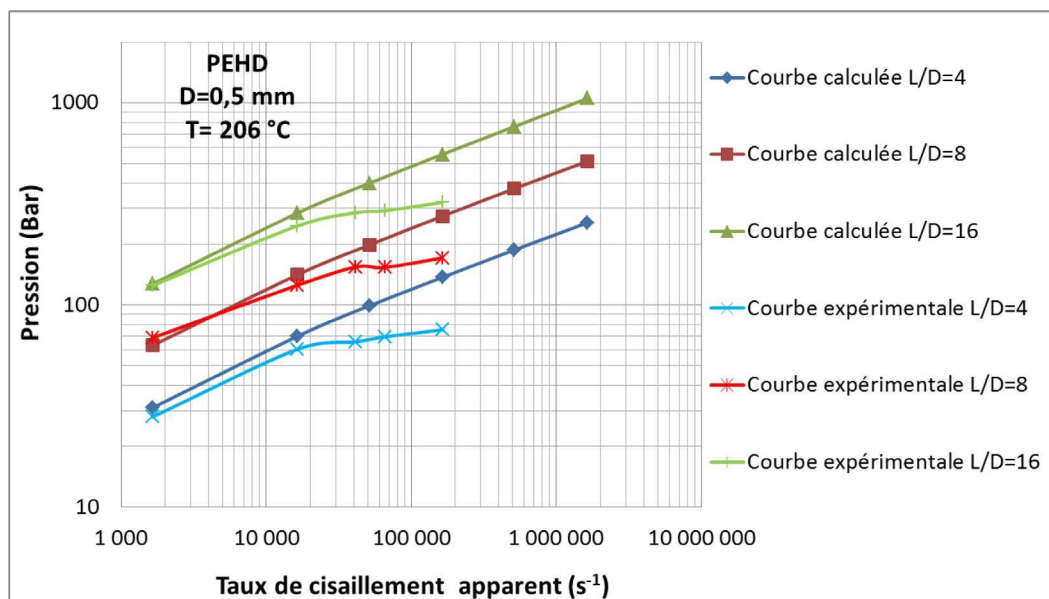
Figure 4-47 : Pseudos courbes de Bagley, cas sans dépendance, PEHD.

La valeur de pression, en entrée du tube de longueur 8 mm ( $L/D = 16$ ), est de 556 bar pour un taux de cisaillement apparent de  $1,64 \cdot 10^5$   $s^{-1}$  pour le calcul avec toute dépendance. Cette valeur est de 542 bar pour le calcul sans dépendances. Pour le même taux de cisaillement, avec une longueur de tube de 2 mm ( $L/D = 4$ ), la pression est de 137 bar dans le cas du calcul toute dépendance et elle est de 135 bar pour le calcul sans dépendance. Nous avons de très faibles écarts entre le cas toute dépendance et le cas sans dépendance quel que soit le taux de cisaillement.



Nous comparons les résultats du calcul avec les résultats rhéologiques expérimentaux à hauts taux de cisaillement du PEHD. La Figure 4-48 montre les courbes d'écoulement (évolution de la pression en entrée du capillaire en fonction du taux de cisaillement apparent) calculées et expérimentales pour différentes longueurs des capillaires.

La valeur de la pression expérimentale (mesurée au niveau du convergent et corrigée par la valeur de la pression d'entrée selon la méthode de Bagley) est proche de celle issue du calcul pour les écoulements à faibles taux de cisaillement. L'écart entre ces valeurs se creuse pour les écoulements à forts taux de cisaillement. En effet, le calcul de l'écoulement est effectué à l'aide d'une loi rhéologique obtenue en supposant dans l'étude expérimentale des conditions d'écoulement classiques (sans échauffement, ni compressibilité, ni piezodépendance de la viscosité,...), celui-ci donne des pertes de charges cohérentes avec l'expérience à faibles vitesses de déformation, mais qui surestiment significativement les valeurs mesurées à des taux de cisaillement plus importants. Nous pouvons supposer que le glissement est sous-estimé, mais aussi, que les instabilités et l'effet de l'inertie, voire de la viscoélasticité, que nous n'avons pas pris compte, peuvent jouer un rôle.



**Figure 4-48 : Comparaison des courbes de pression entre les résultats du calcul (toute dépendance) et les résultats expérimentaux, PEHD.**

La Figure 4-49 confirme que les variations des pressions entre le cas toute dépendance et le cas sans dépendance sont de mêmes ordres de grandeurs. Ceci montre que même pour un calcul sans dépendance les écarts avec les résultats expérimentaux restent les mêmes.

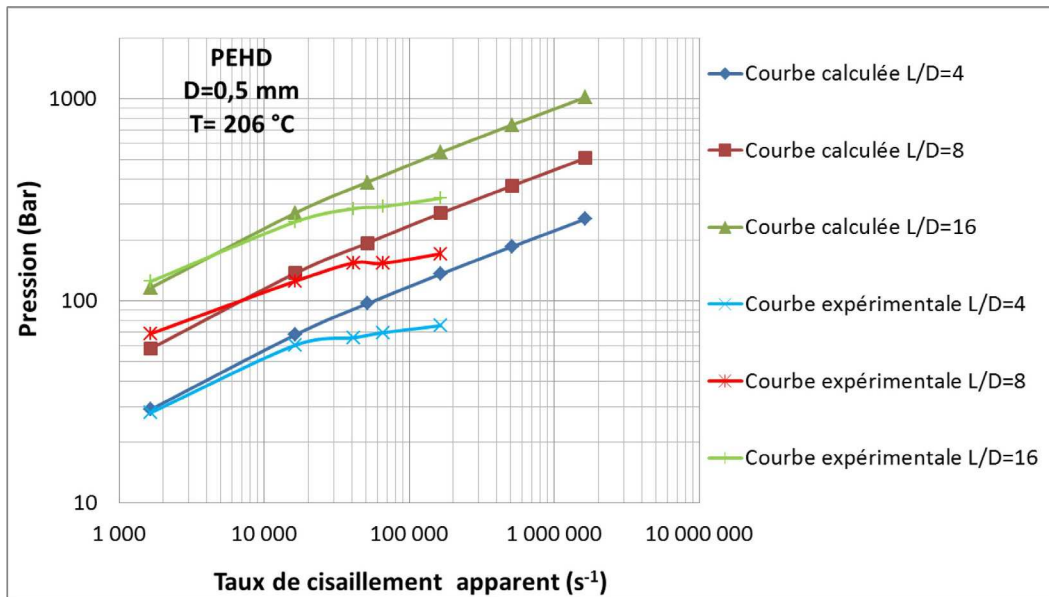


Figure 4-49 : Comparaison des courbes d'écoulement entre les résultats du calcul (sans dépendance) et les résultat expérimentaux, PEHD.

#### b) PMMA

Nous rappelons les données sur le glissement utilisées pour le PMMA. Les paramètres de la loi de Norton,  $n = 0,2$  et  $\alpha = 10^6$  Pa.s<sup>n</sup>.m<sup>-n</sup>, sont prises arbitrairement pour minimiser le glissement, avec les paramètres choisis, la vitesse de glissement représente 6% de la vitesse moyenne.

Le calcul est réalisé avec différentes valeurs de débit évoluant suivant le Tableau 4-12.

Débit (mm <sup>3</sup> s <sup>-1</sup> )	20,10	201,06	502,65	2010,6	5026	20106
Taux de cisaillement apparent ( $s^{-1}$ )	$1,64.10^3$	$4,10.10^4$	$5,12.10^4$	$1,64.10^5$	$4,10.10^5$	$1,64.10^6$

Tableau 4-12 : Valeur de débits pour les tests rhéologique

La Figure 4-50 et la Figure 4-51 présentent les courbes d'écoulement et les pseudos courbes de Bagley calculées respectivement dans un cas avec toutes les dépendances et dans un cas sans dépendances pour le PMMA.

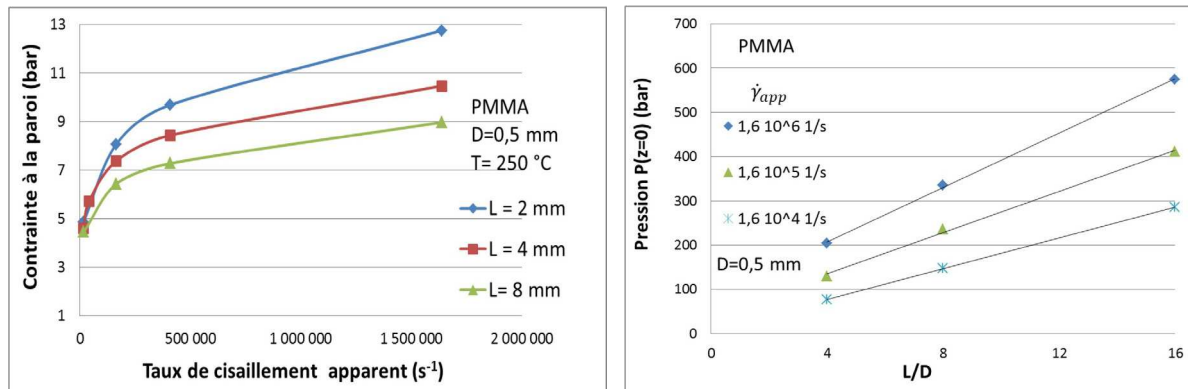


Figure 4-50 : Courbes d'écoulement et courbes de Bagley, cas compressible, thermo- et piezo- dépendant avec glissement à la paroi, PMMA.

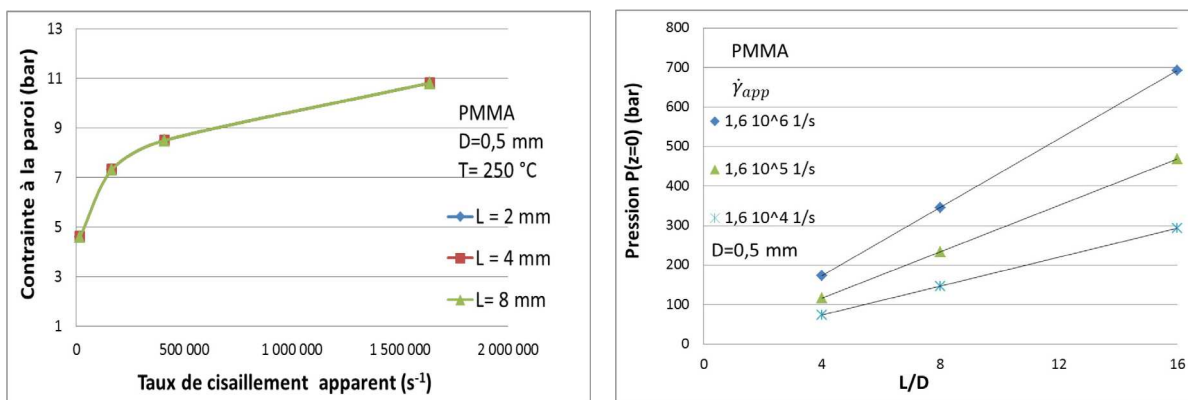


Figure 4-51 : Courbes d'écoulement et courbes de Bagley, cas sans dépendance, PMMA.

Nous retrouvons dans le cas avec toutes les dépendances que les courbes de contrainte à la paroi en fonction du taux de cisaillement ne se superposent pas alors que dans le cas sans dépendances ces courbes se superposent. En effet, dans ce dernier cas la contrainte à la paroi ne dépend pas de la géométrie. Avec dépendances nous avons des écarts importants, nous avons montré précédemment que les valeurs de pression sont essentiellement sensibles à la thermodépendance qui est ici combinée à l'échauffement, les autres paramètres (glissement, compressibilité, piezodépendance) ont moins d'influence. La vitesse de glissement est faible, de l'ordre de 6 % de la vitesse moyenne. Le décalage des courbes d'écoulement n'est pas dû au glissement, et il serait dangereux d'exploiter de telles courbes expérimentales dans le but de déterminer une loi de glissement.

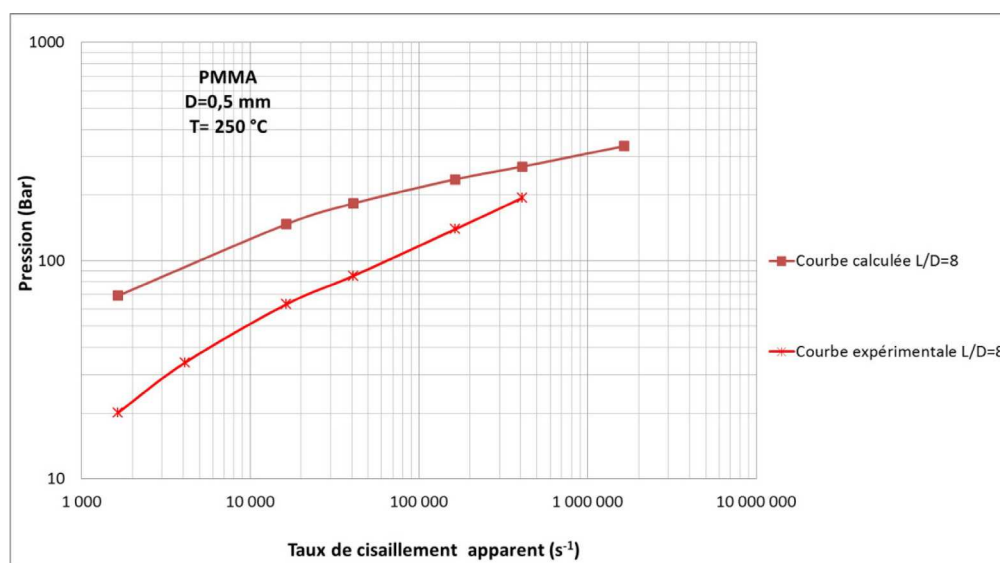
Nous remarquons également que pour le cas toute dépendance, Figure 4-50, les ordonnées des courbes des pseudos Bagley sont non nulles. Ceci est dû au fait que les points ne sont pas alignés, et qu'une courbe de tendance linéaire conduit à un résultat faux (la calcul donnerait

évidemment une perte de charge nulle dans un capillaire de longueur nulle). Nous constatons une légère concavité « dirigée vers le bas ». En examinant de près les courbes de Bagley expérimentales de la Figure 3-41, on constate une tendance similaire. Nous pouvons donc penser que les corrections de pression d'entrées réalisées avec le lissage linéaire de la Figure 3-41 surestiment la réalité.

Nous comparons les résultats du calcul toute dépendance avec ceux de l'expérience, pour cela nous présentons la superposition de l'évolution de la pression calculée et mesurée en fonction du taux de cisaillement apparent pour l'écoulement dans la filière avec le rapport  $L/D = 8$ , Figure 4-52.

Contrairement à toute attente, nous avons un écart plus marqué entre les points calculés et les points expérimentaux pour les faibles taux de cisaillement.

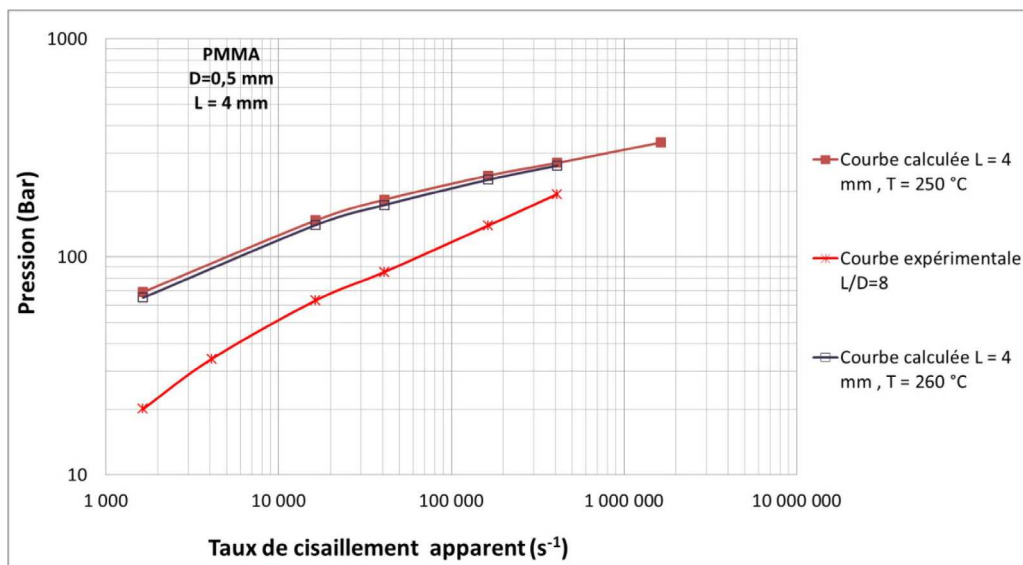
Nous avons montré au chapitre 3, que les données rhéologiques obtenues en rhéométrie capillaire se superposent difficilement aux données dynamiques, sauf au prix de contorsions peu fondées (facteur de glissement en température fictifs), nous retrouvons cet écart considérable en reconstruisant les relations pression/débit (taux de cisaillement apparent).



**Figure 4-52 : Comparaison des courbes découlement entre le résultat expérimental et le calcul toute dépendance, pour  $D = 0,5$  mm et  $L = 4$  mm, PMMA ( $T = 250$  °C).**

Comme pour les essais expérimentaux nous avons un doute quant aux températures de l'essai. Nous réalisons un calcul de la pression à différents taux de cisaillement apparents dans la filière de rapport  $L/D = 8$  à une température d'entrée de  $260$  °C, soit  $10$  °C de plus que les

essais précédents. La Figure 4-53 montre la superposition entre la courbe d'écoulement expérimentale avec les deux courbes d'écoulement calculées à 250 et 260 °C. Nous trouvons que les ces deux dernières se superposent à peu près. Il faudrait travailler avec une température d'entrée significativement plus élevée pour obtenir des pressions du bon ordre de grandeur, mais cette extrapolation ne nous paraît pas très physique. Ceci peut paraître surprenant vue la sensibilité de la viscosité du PMMA à la température, mais nous pensons que l'échauffement qui a lieu dans le capillaire, et surtout en paroi, est beaucoup plus important que l'écart de température que nous imposons en entrée.



**Figure 4-53 : Comparaison des courbes découlement entre le résultat expérimental et le calcul toute dépendance (T = 250 et 260 °C), PMMA.**

La Figure 4-54 et la Figure 4-55 montrent les superpositions des courbes d'écoulement expérimentales avec celles du calcul dans le cas toute dépendance et le cas sans dépendance respectivement pour les différentes longueurs de filières. Les valeurs de pressions sont plus élevées dans le cas du calcul sans dépendances que dans le cas avec toutes les dépendances pour les valeurs de cisaillement étudiées. Les écarts sont plus importants dans la filière de plus petite longueur.

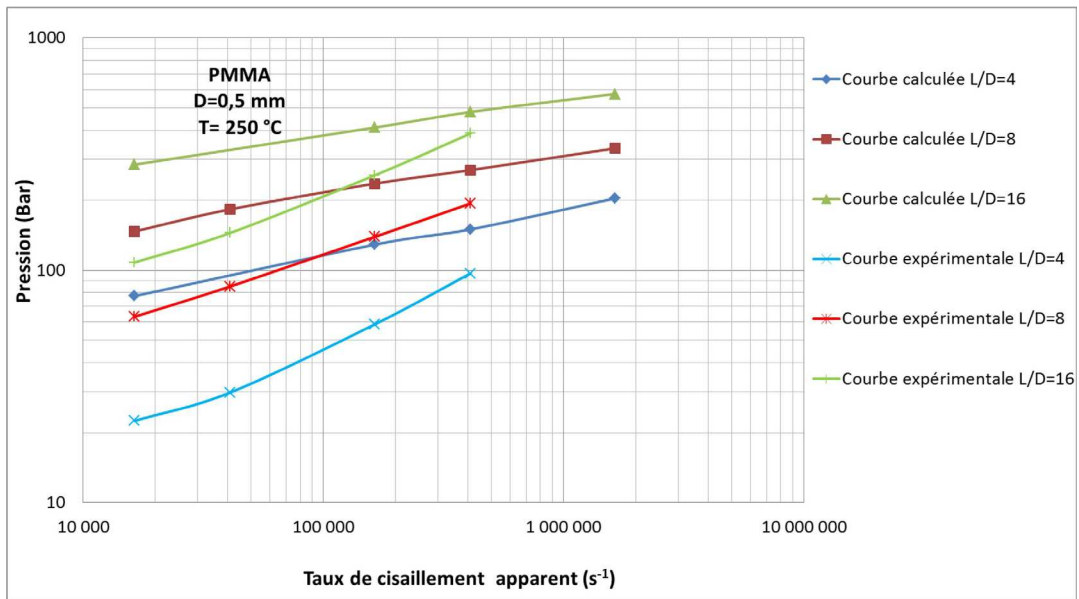


Figure 4-54 : Comparaison des courbes d'écoulement entre le résultat expérimental et le calcul toute dépendance, PMMA.

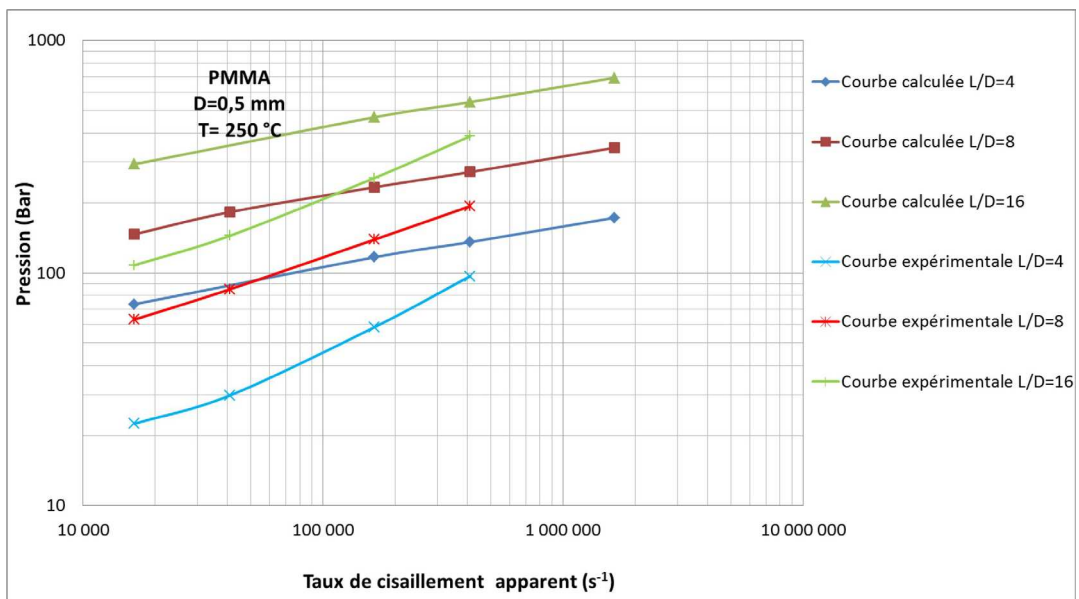


Figure 4-55 : Comparaison des courbes d'écoulement entre le résultat expérimental et le calcul sans dépendance, PMMA.

## 4.6 Synthèse

Un modèle rhéologique a été développé tenant compte de l'écoulement à forts taux de cisaillement. Des phénomènes usuellement négligés dans les calculs rhéologiques, ne le sont

plus dans notre cas d'étude. Nous avons testé l'incidence de ces phénomènes : thermo- et piezo- dépendances de la viscosité, compressibilité et glissement à la paroi.

Nous avons considéré une viscosité lissée par une loi Carreau Yasuda à partir des résultats expérimentaux. La thermodépendance de la viscosité a été introduite par un facteur de glissement exprimé suivant une loi WLF ou une loi Arrhenius, selon que nous travaillons respectivement avec le PEHD, semi-cristallin, ou le PMMA, amorphe.

Dans le cas du PEHD, la thermodépendance et le glissement à la paroi font baisser la pression, tandis que la piezodépendance et la compressibilité la font augmenter. Pour les vitesses d'écoulement considérées, la pression en entrée du tube tenant compte de toutes les dépendances est équivalente à celle sans prise en compte des dépendances.

Nous pouvons conclure que le fait d'ignorer les phénomènes physiques qui ont lieux à forts taux de cisaillement lors de l'analyse expérimentale est plus judicieux que de corriger les données du dépouillement par un seul des phénomènes et négliger les autres.

Dans le cas du PMMA, la thermodépendance est prépondérante sur l'évolution de la pression en entrée du tube.

Nous avons aussi réalisé une analyse des essais rhéologiques, dans laquelle nous avons comparé les pressions en entrée de capillaire issues des pressions mesurées corrigées par la méthode de Bagley avec les pressions calculées.

Pour le PEHD, les pseudo-courbes de Bagley calculées sont quasi linéaires : les différents phénomènes physiques pris en compte perturbent peu la linéarité attendue hors dépendance, et se compensent dans une certaine mesure. Nous avons trouvé une bonne corrélation entre les pressions calculées et mesurées pour les faibles taux de cisaillement. Ceci confirme l'exactitude du modèle choisi. En revanche les écarts se creusent à forts taux de cisaillement. Nous pouvons soupçonner que le glissement est sous-estimé dans la loi choisie, que les phénomènes négligés dans le calcul (instabilités, inertie, viscoélasticité) jouent un rôle, mais aussi que la correction de pression d'entrée selon la méthode de Bagley est critiquable.

Pour le PMMA, les pseudo-courbes de Bagley calculées sont notablement non linéaires. Nous avons une concavité identique à celle des courbes de Bagley expérimentales. Les courbes

calculées de la contrainte à la paroi en fonction du taux de cisaillement pour différents rapports  $L/D$  sont très décalées, ceci est dû principalement à l'échauffement, et peu au glissement. Les confrontations entre les courbes d'écoulement calculées et celles de l'expérience montrent des divergences importantes. Pour ces calculs nous avons utilisé une rhéologie issue des courbes dynamiques, où les phénomènes d'inertie, les instabilités, le glissement ..., n'interviennent pas. Avec cette rhéologie nous faisons intervenir la thermodépendance, la piezodépendance, la compressibilité et un faible glissement à la paroi. Les divergences reflètent probablement principalement les écarts que nous avons obtenus au chapitre 3, entre les courbes de viscosité en rhéométrie dynamique, et les courbes de viscosités en rhéologie capillaire, dont les données initiales (courbes d'écoulement) ont servi aux confrontations réalisées dans ce chapitre.





## **5 Chapitre Microinjection**

Dans ce chapitre, nous nous intéressons au procédé de microinjection et à la mise en œuvre de micro-pièces que nous réalisons à l'aide d'une presse conçue et réalisée dans le cadre de notre projet d'étude. Dans un premier temps, nous retraçons brièvement le but et les défis de la conception de cette presse. Nous décrivons le mode de fonctionnement ainsi que l'instrumentation et le système d'acquisition de données de la machine. Dans un second temps, nous exposons les résultats des essais de microinjection que nous avons réalisés en faisant varier les paramètres de mise en œuvre que nous analysons par la suite.

Nous avons enfin réalisé des simulations 3D du procédé de microinjection en utilisant le logiciel Rem3D. Nous confrontons, dans des situations variées, les essais expérimentaux et les résultats de simulation.

### **5.1 Etude expérimentale**

#### **5.1.1 Presse de microinjection**

##### **5.1.1.1 Conception de la presse**

L'intérêt de la conception et la réalisation d'une nouvelle presse pour la microinjection a été défini par un besoin de compétitivité technologique par rapport au marché actuel. Les presses existantes sont soit très sophistiquées et d'un coût très élevé, soit elles ne répondent pas parfaitement aux exigences de la microinjection. En effet, le procédé de microinjection diffère de celui de l'injection classique par certains challenges technologiques. L'enjeu est de réaliser des pièces de petits volumes d'une précision pointue tout en assurant une reproductibilité du produit. Le processus doit garantir l'homogénéité du polymère fondu ainsi que des temps de séjour réduits du matériau à haute température. Il faut également assurer des vitesses d'injection importantes pour pouvoir remplir les fines couches ou les cavités et de ce fait les pressions atteintes dans le moule sont très élevées.

La presse de microinjection doit répondre aux exigences suivantes :

- Le volume du polymère fondu doit être le plus proche possible du volume injecté.
- La stagnation de la matière entre deux cycles doit être minimisée.
- La vitesse d'injection doit être très rapide et atteinte en un temps très court.

- La création de « goutte froide », correspondant à du polymère refroidi qui peut bloquer le système d'alimentation entre deux injections, doit être évitée.

La conception de la presse du projet, réalisée par Getelec, est issue de la technologie KAP des presses de surmoulage qui a été ensuite adaptée pour en faire un outil de rhéologie, le Rhéoplast, présenté au paragraphe 3.3.1.

La presse comporte une zone de plastification découplée de la zone d'injection. Cette dernière permet le dosage du volume à injecter. Dans les systèmes de plastification classiques, une vis d'extrusion est utilisée pour fluidifier le polymère. Dans notre cas, la plastification est assurée par un système de Couette, où le polymère est chauffé par cisaillement entre une paroi extérieure fixe et un cylindre intérieur en rotation. La fluidification du polymère se fait alors par l'auto échauffement dû au cisaillement et par la conduction de la chaleur générée par les colliers chauffants placés autour du cylindre extérieur.

#### 5.1.1.2 Mode de fonctionnement de la presse

Les différents éléments de la presse sont décrits à la Figure 5-1.

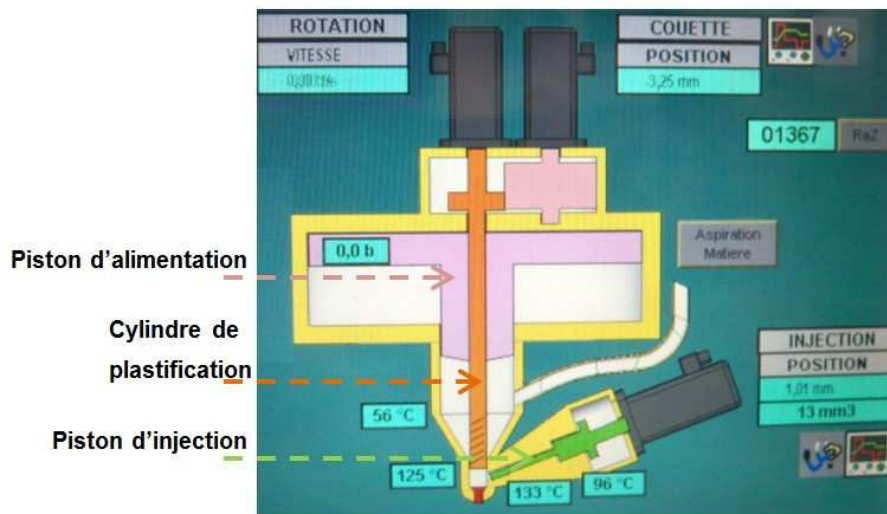


Figure 5-1 : Schéma du principe de fonctionnement de la presse de microinjection.

Le processus de mise en œuvre se fait en trois phases :

- La première phase est déterminée par la fermeture du moule, l'appui de la buse sur le moule et l'ouverture du clapet.
- La deuxième phase est celle du dosage qui est définie par les étapes suivantes. Le polymère est aspiré dans la zone de cisaillement, le cylindre intérieur du Couette

est remonté, laissant un espace entre la zone de cisaillement et la zone d'injection, puis il est mis en rotation et le vérin annulaire d'alimentation appuie sur le polymère pour permettre son transfert dans la chambre d'injection. Le recul prédéfini du piston d'injection permet de déterminer précisément le volume du polymère à injecter. La phase se termine par la descente du cylindre intérieur du Couette pour obturer la fente en bas de la zone de cisaillement.

- La troisième phase est celle de l'injection, la soupape obturant la buse s'ouvre et le polymère dosé est injecté à une vitesse imposée, (c'est à ce niveau que la conception de la presse de microinjection diffère fondamentalement de celle du Rhéoplast).

Le piston d'injection a une phase d'accélération, une phase à vitesse constante et une phase de décélération qui sont réglables en un pourcentage d'une valeur maximale qui est de 296 mm/s. La fin du remplissage est déterminée par la fin de la course du vérin d'injection. Le passage en maintien se fait en imposant une course et un temps de maintien. Le but du maintien ici est d'éviter la remontée du polymère avec le recul du piston d'injection et de créer de ce fait une bulle d'air dans la carotte. En effet, comme la solidification est rapide, il n'y a pas de phase de maintien au sens de l'injection classique.

Le cycle d'injection avec les phases de cisaillement, de dosage et de remplissage du moule est très rapide, environ 5 s.

#### **5.1.1.3 Description de la presse**

La presse comporte quatre vérins pneumatiques qui servent à l'approche et au recul de la buse, à donner le mouvement du piston d'alimentation, et le mouvement de dégagement du clapet qui sert au détachement de la goutte froide. Nous avons également trois moteurs électriques qui assurent la rotation du cylindre de plastification central, le mouvement du piston d'injection et le mouvement vertical du cylindre de plastification en contact avec la fin de cette zone et qui assure l'obturation pendant la phase d'injection ou l'ouverture pendant la phase de plastification, Figure 5-2.



**Figure 5-2 : Photo de la presse de microinjection.**

Nous avons aussi un vérin hydro pneumatique qui sert à assurer la fermeture du moule avec une force de 10 tonnes.

La presse est montée de façon verticale, ceci a pour but, dans certaines applications, de faciliter la pose de pièces pour le surmoulage. Pour nous, le démoulage se fait manuellement.

L'alimentation se fait par aspiration des granulés de polymère et elle est contrôlée par un capteur de détection qui permet d'introduire plus ou moins de matière. Ceci a pour but de se limiter à la quantité de matière nécessaire et de réduire par la suite le nombre de cycles d'injection par phase de remplissage de la zone de plastification.

Le piston d'injection a une course de 40 mm, et un diamètre de 4 mm. Le volume maximal injectable est donc d'environ  $500 \text{ mm}^3$ , soit  $0,5 \text{ cm}^3$ .

Un clapet est utilisé pour éviter la goutte froide. Le clapet comporte une soupape conique qui monte dans la zone entre le cylindre central en position basse et le piston d'injection en fin de course. Cette soupape permet de réduire le volume du matelas.

La régulation de la température de la zone de plastification se fait à l'aide de deux colliers chauffant. Les zones de plastification et d'injection sont séparées par un isolant pour permettre une régulation de température différente dans chaque zone. Le refroidissement se fait par la circulation d'un liquide froid en partie haute pour éviter l'échauffement de la zone d'alimentation.

#### 5.1.1.4 Moule de microinjection et instrumentation

Le moule, en acier poli, de dimensions 80x80x30 mm<sup>3</sup>, comporte une partie inférieure instrumentée et une partie supérieure modulaire. Sur la partie supérieure peuvent être changés l’empreinte et les zones du canal d’alimentation et du seuil.

Nous travaillons avec une empreinte de 21 mm de longueur, 12 mm de largeur et d’épaisseur variable qui décroît en escalier de 0,5, 0,3 et 0,2 mm sur des longueurs égales de 7 mm. Nous avons vérifié les épaisseurs exactes dans l’empreinte supérieure à l’aide d’un dispositif de métrologie avec une précision au millième du millimètre près, elles sont de 0,500, 0,290 et 0,185 mm.

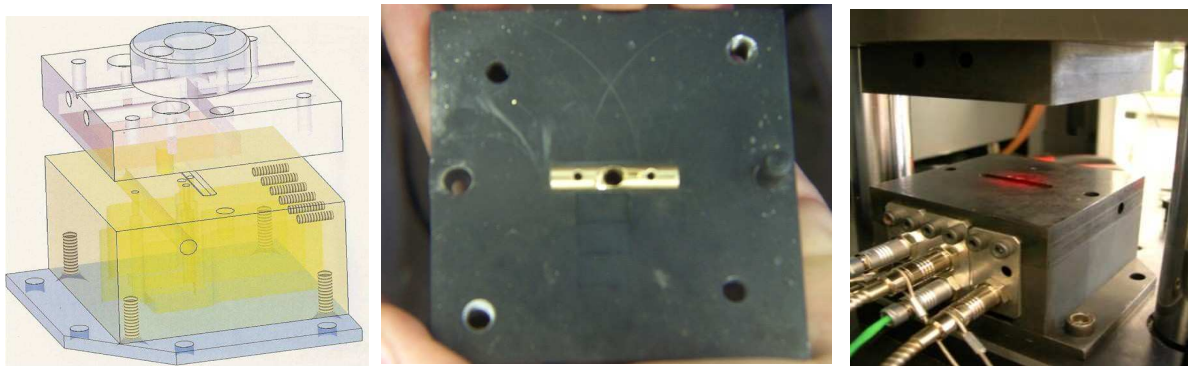


Figure 5-3 : Dessin et photo des parties supérieure et inférieure du moule pour la microinjection.

Le canal d’injection cylindrique comporte une moitié dans la partie supérieure du moule et une autre dans la partie inférieure. Ce canal a été réduit, par rapport à sa taille originale dans le moule, en rajoutant une pièce en cuivre sur la partie supérieure du moule, Figure 5-3.

La pièce microinjectée comprend une carotte, un canal conduisant au seuil, un canal en contact avec le capteur P<sub>1</sub> et une paroi mince de trois épaisseurs différentes, Figure 5-4.

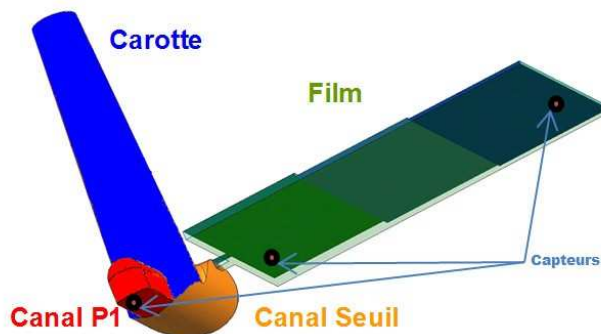


Figure 5-4 : Dessin de la pièce microinjectée.

Nous utilisons trois capteurs Kistler de diamètre 2,5 mm, dont l'un, de pression  $P_1$ , est placé dans le canal et deux, de pression-température  $P_2$  et  $P_3$ , sont placés dans l'empreinte, Figure 5-5. Deux fibres optiques sont implantées en vis à vis dans les deux faces du moule pour mesurer la lumière transmise et la vitesse de cristallisation des semis- cristallins en écoulement dans l'empreinte. Nous ne nous servons pas de ce dernier dispositif dans le cadre de notre étude. Les capteurs sont reliés à une centrale d'acquisition (Kistler) qui est elle-même raccordée à un ordinateur.

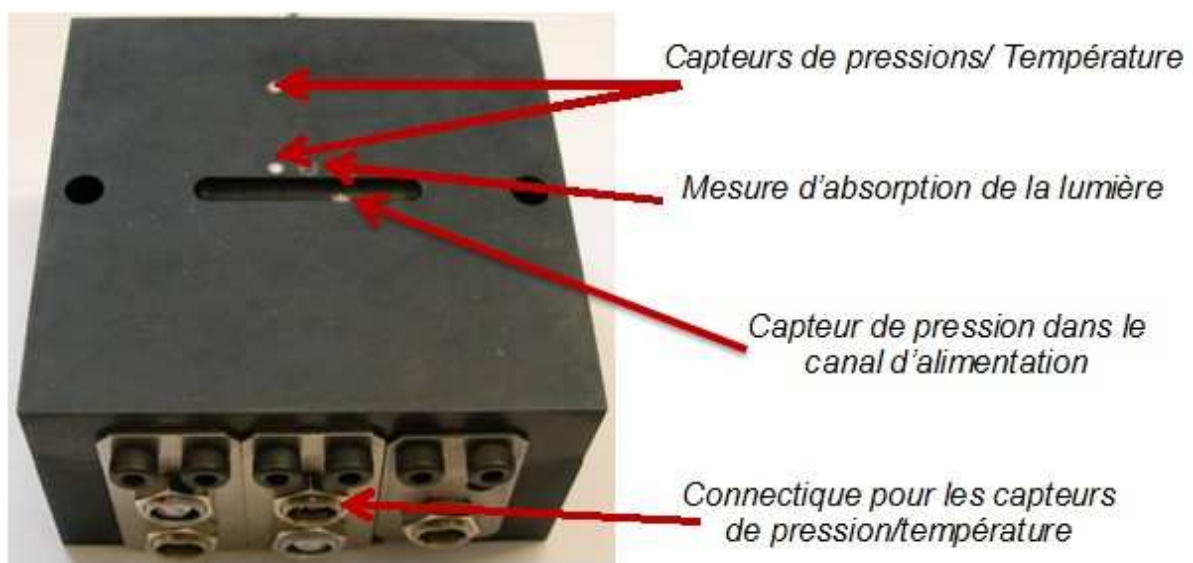


Figure 5-5 : Instrumentation sur la partie inférieure du moule pour la microinjection.

#### 5.1.1.5 Acquisition des données

Sur l'écran de contrôle de la machine, nous pouvons visualiser les différentes courbes, dont celles du couple de cisaillement, la position verticale du cylindre de plastification (Couette), la pression d'injection, la pression de dosage et le volume injecté, Figure 5-6.

Le couple de cisaillement est compris entre 0 et 150 % d'une valeur du couple maximale de 2,1 Nm. « L'ouverture du Couette » correspond à l'entrefer ouvert entre la zone de plastification et le pot d'injection, elle varie de -2,5 à +4 mm. La pression d'injection maximale est de 2600 bar. La pression de dosage peut aller de 0 à 10 bar. Enfin, le volume d'injection peut atteindre 502 mm<sup>3</sup>.

Pour le traitement des essais de microinjection, nous enregistrons les données des capteurs implantés dans le moule. La pression sur le capteur situé dans le canal est notée  $P_1$ , ceux dans l’empreinte, donnent les pressions  $P_2$  et  $P_3$  et les températures  $T_2$  et  $T_3$  qui correspondent respectivement aux données près de l’entrée et de la fin de la paroi fine, ici appelée film.

Nous enregistrons également la courbe de la vitesse d’injection, exprimée en pourcentage de la vitesse maximale qui est de 296 mm/s. D’où un débit maximal de  $3,7 \text{ cm}^3/\text{s}$ , et une durée de remplissage minimale du volume total de 0,13 s.

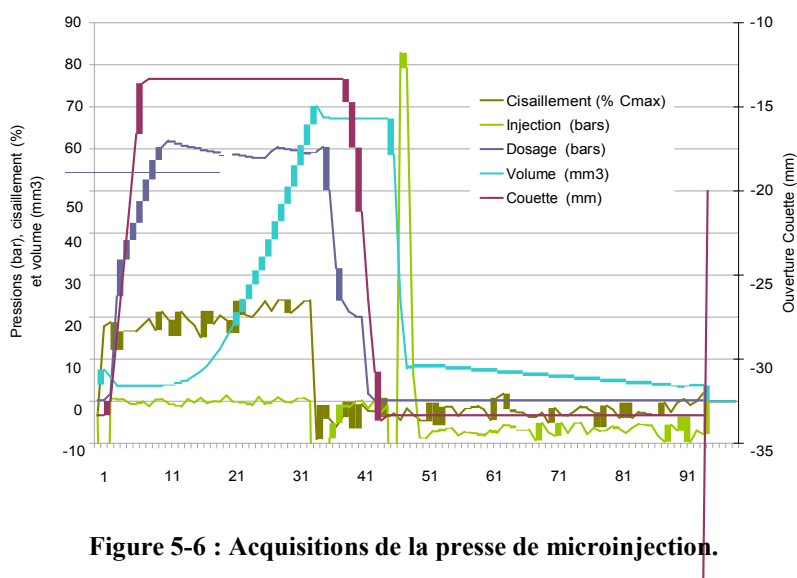


Figure 5-6 : Acquisitions de la presse de microinjection.

#### 5.1.1.6 Conditions de mise en œuvre

Nous travaillons avec le PMMA et le PEHD présentés dans les chapitres précédents. Le PMMA est préalablement étuvé à 90 °C pendant plus de 4 h, il a été procédé de même pour les essais rhéologiques. Le PEHD est stabilisé avec 1 % d’IRGANOX. Le mélange est réalisé à l’aide d’une extrudeuse bi-vis BRABENDER. L’extrudeuse est suivie d’un granulomètre qui permet l’obtention de granulés prêts à l’emploi sur la presse de microinjection. Le mélange est réalisé avec des températures de régulation du fourreau entre 210 et 240 °C du début de la trémie à la tête des vis. La vitesse de rotation des vis est de 100 tr/min.

Pour les essais de microinjection, le PEHD est injecté à 265 °C et le PMMA à 260 °C. Le moule est chauffé par des résistances chauffantes et par contact avec le polymère. Il n’est pas refroidi. Les paramètres de réglage de la presse pour les deux polymères sont listés au Tableau 5-1.



Matériau	PMMA	PEHD
Température injection (°C)	260	265
Température zone de cisaillement (°C)	235	260
Température zone de dosage (°C)	260	265
Pression de dosage (bar)	7	9
Vitesse de rotation (t/s)	8	8
Position Couette ouverte (mm)	-2	-2,7
Quantité de matière dosée (mm <sup>3</sup> )	350	400
Assistance recul dosage (%)	0	0
Vitesse maximale d'injection (%)	Entre 20 à 100	Entre 20 et 100
Accélération (%)	100	100
Décélération (%)	100	100
Pression d'injection (bar)	2600	2600
Pression de maintien (bar)	1000	1000
Temps de maintien (ms)	4500	4500

**Tableau 5-1 : Paramètres de mise en œuvre de la presse de microinjection.**

## 5.1.2 Description des micro-pièces injectées

Nous calculons le volume de chaque zone ainsi que les volumes injectés entre les différents capteurs. Nous comparons également ces grandeurs dans l’empreinte du moule et les dimensions des pièces injectés pour différents paramètres. Nous regardons enfin l’aspect des micro-pièces injectées.

### 5.1.2.1 Volume de l’empreinte du moule

La carotte est un cône tronqué de bases circulaires qui est relié à la buse. Son volume est donné par la formule suivante,  $V_{Carotte} = H/3 \cdot (B + b + (B \cdot b)^{1/2})$ , avec  $H = 18,5$  mm la hauteur de la carotte,  $B = 14,5$  mm<sup>2</sup> et  $b = 4,9$  mm<sup>2</sup> les surfaces respectives de la grande et de la petite bases du cône. Le volume de la carotte est alors  $V_{Carotte} = 172$  mm<sup>3</sup>.

Le canal avait pour une autre application du moule une forme cylindrique, puis il a été réduit pour former deux canaux de part et d’autre de la carotte, dont le premier permet le contact du polymère avec le capteur P<sub>1</sub> et le second conduit vers le seuil d’injection dans la paroi mince.

Le premier canal est un parallélépipède droit arrondi sur deux de ses cotés, dont le volume est donné par la formule  $V_{Canal P1} = A.D.L + 1/2.A.\pi.(D/2)^2 + 1/2.L.\pi.(D/2)^2 + 1/4.4/3.\pi.(D/2)^3$ , où  $A = 1,3$  mm et  $D = 2$  mm sont les côtés du parallélépipède et  $L = 3$  mm est sa longueur. Le volume vaut  $V_{Canal P1} = 15,6$  mm<sup>3</sup>.

Nous approchons le second canal par un cylindre avec une base de forme elliptique dont le volume est défini par  $V_{Canal seuil} = \pi.p.q.h$ , avec  $p = 1,2$  mm et  $q = 2$  mm les foyers de l'ellipse et  $h = 3$  mm la longueur du cylindre. Le volume approché est alors  $V_{Canal seuil} = 22,62$  mm<sup>3</sup>.

Le seuil est un parallélépipède de cotés  $a = 0,85$  mm et  $b = 0,8$  mm, d'épaisseur  $e = 0,5$  mm et son volume est  $V_{seuil} = 0,34$  mm<sup>3</sup>.

Le film est composé de trois épaisseurs, ici nous prenons celles mesurées dans l'empreinte,  $e_1 = 0,5$  mm,  $e_2 = 0,29$  mm et  $e_3 = 0,185$  mm s'étendant chacune sur une longueur de 7 mm avec une largeur du film de 12 mm, son volume est alors  $V_{film} = 81,9$  mm<sup>3</sup>.

Le volume total de la pièce est  $V_{total} = 292,5$  mm<sup>3</sup>. Nous avons ainsi une carotte qui forme 58 % du volume total, l'ensemble des canaux et du seuil en représentent 13 % et la paroi mince en représente 29 %.

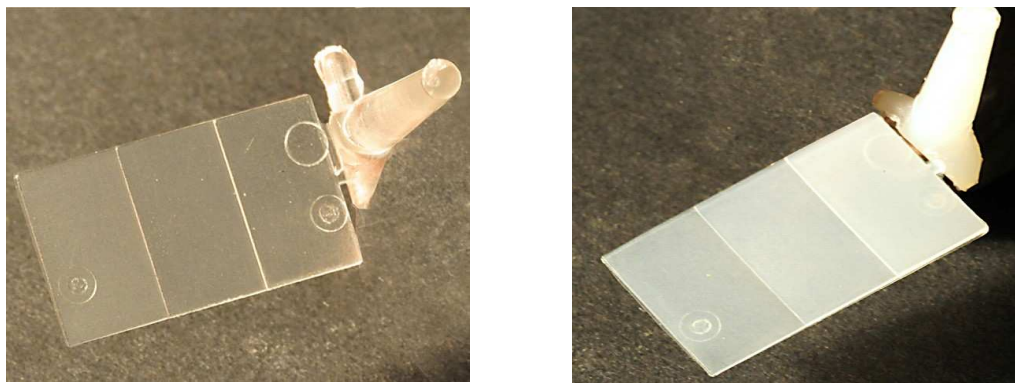
Nous nous intéressons également à la détermination des volumes entre les capteurs. Ceci a pour but par la suite de déterminer les débits lors de l'injection sachant les instants où les capteurs sont touchés.

Le capteur  $P_1$  est placé au bout du premier canal et celui-ci est touché quand la carotte et le deuxième canal sont remplis. En effet, comme le canal seuil est plus étroit que le canal  $P_1$ , l'écoulement du polymère se fait plus facilement dans ce dernier qui sera rempli entièrement avant la fin du remplissage du canal seuil. Ce raisonnement est confirmé par des sous remplissages qui seront présentés au paragraphe 5.1.2.3. Le capteur  $P_1$  est touché quand un volume de 210,66 mm<sup>3</sup> est injecté depuis le début de déplacement de la vis d'injection.

Les capteurs  $P_2$  et  $P_3$  sont placés aux extrémités de la paroi mince. Le premier est en contact contre la paroi et le dernier ayant un retrait de 0,5 mm par rapport au bout du film et tenant compte du diamètre du capteur qui est de 2,5 mm, le volume injecté entre les deux positions est de 72,3 mm<sup>3</sup>.

### 5.1.2.2 Epaisseurs de la paroi mince

Nous mesurons les trois épaisseurs successives  $e_1$ ,  $e_2$  et  $e_3$  du film pour différentes vitesses du piston d'injection (Figure 5-7).

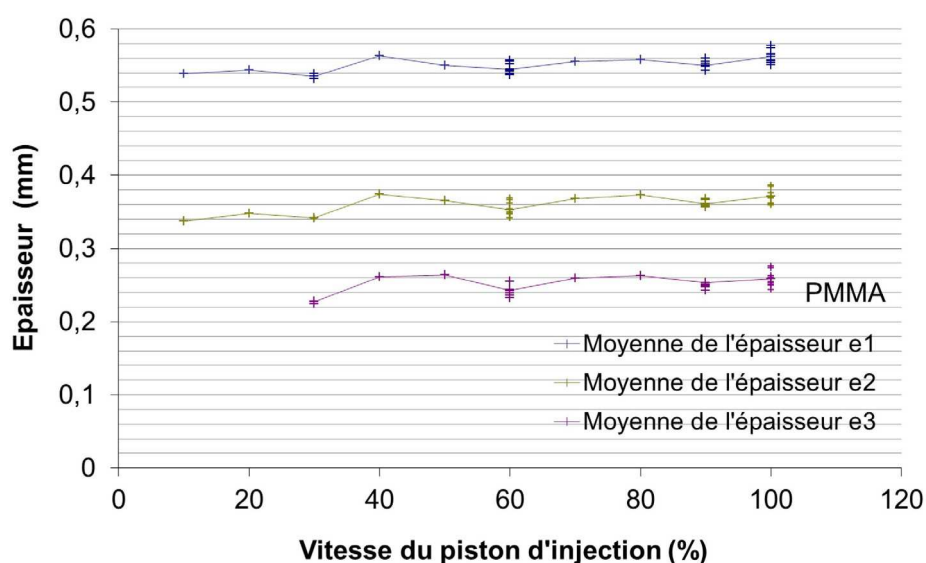


**Figure 5-7 : Photo des pièces microinjectées en PMMA et en PEHD.**

La Figure 5-8 montre pour le PMMA les épaisseurs mesurées sur dix échantillons injectés à 30, 60, 90 et 100 %. Nous remarquons que la variation parmi ces dix mesures est faible, et nous présentons pour les autres vitesses les valeurs de l'épaisseur sur un seul échantillon.

La Figure 5-9 représente les épaisseurs de dix échantillons dans le cas du PEHD pour trois pourcentages de la vitesse maximale du piston d'injection, 80, 90 et 100 %.

Pour les deux polymères, la pièce a une épaisseur supérieure à celle de la cavité, qui rappelons le sont de 0,5 ; 0,29 et 0,185. Pour le PMMA, l'écart est d'environ 0,05 mm dans la première zone de la plaque, et de 0,07 à 0,076 mm dans les deux zones suivantes. Pour le PEHD, l'écart est d'environ 0,035 mm dans la première zone, et de 0,05 mm dans les zones suivantes. Les pièces en PMMA sont donc plus épaisses que celles en PEHD. Ceci peut être dû au fait que le PEHD semi-cristallin présente un retrait au refroidissement plus important que celui du PMMA amorphe.



**Figure 5-8 : Mesure des épaisseurs du film en PMMA pour différentes vitesses du piston d'injection.**

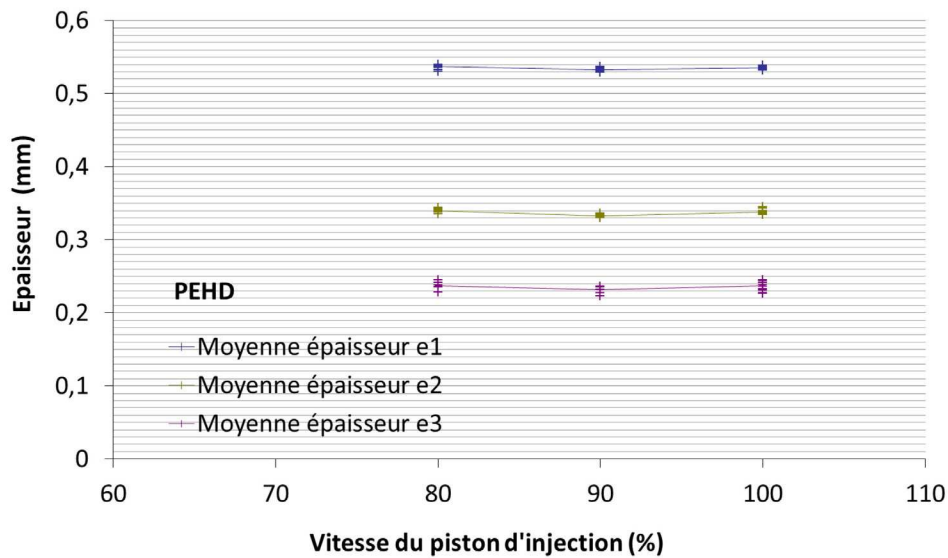


Figure 5-9 : Mesure des épaisseurs du film en PEHD pour différentes vitesses du piston d'injection.

L'écart dépend peu de la vitesse d'injection. Tout au plus peut-on noter pour le PMMA une légère décroissance lorsque l'on passe d'une vitesse d'injection de 40 % à 30 %.

A 10 et 20 %, le PMMA n'a pas atteint la troisième zone, sans doute en raison de la solidification prématurée du polymère.

En injection classique les pièces sont en général plus fines que l'empreinte, en raison du retrait que la phase de compactage – maintien ne compense pas totalement. Nous avons ici une tendance inverse. Nous pouvons évoquer deux raisons :

- Le matériau subit un « sur-compactage », c'est-à-dire que la masse de matière chaude qui rentre dans le moule à haute pression occupe un volume supérieur à celui de la cavité lorsque le matériau rejoint la pression et la température ambiante. Nous allons estimer à l'aide des courbes PVT si cette hypothèse est réaliste. Supposons que, juste avant le démoulage, la cavité supposée non déformée de volume  $V_c$ , contienne une masse  $m$  de polymère à une température de 20 °C et à une pression  $p$  que nous allons évaluer. Notons  $V$  le volume spécifique :

$$V(20\text{ °C}, p) = \frac{V_c}{m}$$

Juste après le démoulage, la masse  $m$  de polymère est toujours à 20 °C, et à pression atmosphérique. Son volume est noté  $V_{pièce}$ . Nous avons :

$$V(20\text{ °C}, 1\text{ bar}) = \frac{V_{pièce}}{m}$$

Nous déduisons des relations précédentes que

$$V(20\text{ °C}, p) = \frac{V_c}{V_{pièce}} V(20\text{ °C}, 1\text{ bar})$$

Les données PVT, par exemple pour le PEHD, nous indiquent que  $V(20\text{ °C}, 1\text{ bar}) = 1,050\text{ cm}^3/\text{g}$ . Nous avons mesuré le volume de la cavité correspondant au film, soit  $V_c = 82\text{ mm}^3$ . Nous avons mesuré le volume correspondant sur la pièce :  $V_{pièce} = 7 \cdot 12 \cdot (0,53 + 0,34 + 0,24) = 93,24\text{ mm}^3$ . Nous en déduisons que  $V(20\text{ °C}, p) = 0,92$ . Les données PVT nous indiquent que la pression doit être égale à  $10^9\text{ Pa}$ , soit 10000 bar, ce qui est physiquement impossible. Si nous prenons une température de matière avant démoulage plus grande, pour correspondre au volume spécifique  $V$  calculé, nous devons avoir une pression encore plus grande.

- Le moule s'ouvre légèrement sous l'influence de la pression d'injection. La surface du film est de  $2,1 \times 1,2 = 2,5\text{ cm}^2$ . Nous verrons que la pression maximale mesurée sur les capteurs est d'environ 800 bar. Cela génère une force de 2 tonnes, inférieure à la force de fermeture du moule qui est de 10 tonnes. Nous ne pouvons donc pas imaginer une ouverture globale du moule, même en tenant compte du fait que l'empreinte n'est pas centrée.
- Le moule peut se déformer par cé dage élastique. Sa structure est assez complexe, mais imaginons pour simplifier qu'il est constitué d'un bloc d'acier de module 200 GPa. La pression appliquée sur le polymère, donc sur la surface du film de  $12 \times 21\text{ mm}^2$  est supposée être de 800 bar. La déformation qui en résulte est de  $0,08/200 = 4 \cdot 10^{-4}$ . Si l'épaisseur du moule est de 30 mm, alors le déplacement est de  $30 \times 4 \cdot 10^{-4} = 0,012\text{ mm}$ . Ceci est plus faible que l'écart d'épaisseur mesuré sur les pièces, mais l'ordre de grandeur n'est pas trop différent. Il est donc probable qu'il y a un cé dage élastique du moule, et peut-être également de certaines parties du bâti de la machine.

Pour la suite de notre étude expérimentale, nous considérons pour chaque matériau et pour les différents cas d'injection les vrais volumes calculés à partir des épaisseurs mesurées sur les pièces. Ceci a pour but de déterminer le plus fidèlement possible les débits d'injection relevés sur les courbes de résultats que nous analysons ultérieurement.

### 5.1.2.3 Sous remplissages des pièces injectées

Nous présentons des pièces avec des sous remplissages pour voir la progression du front de matière. Pour cela, nous injectons à des vitesses de remplissage lentes pour lesquelles le remplissage est incomplet. La Figure 5-10 présente le front de matière pour des pièces en PMMA injectées à 10, 30, 40 et 60 % de la vitesse maximale du piston d'injection. La Figure 5-11 présente les sous remplissages dans des pièces en PEHD injectées à des valeurs inférieures à moins 20 % de la vitesse maximale du piston d'injection. Les vitesses sont différentes pour les différents sous remplissages.

Le front de matière en injection dans le film est tout d'abord circulaire et il devient droit après la première marche d'escalier.

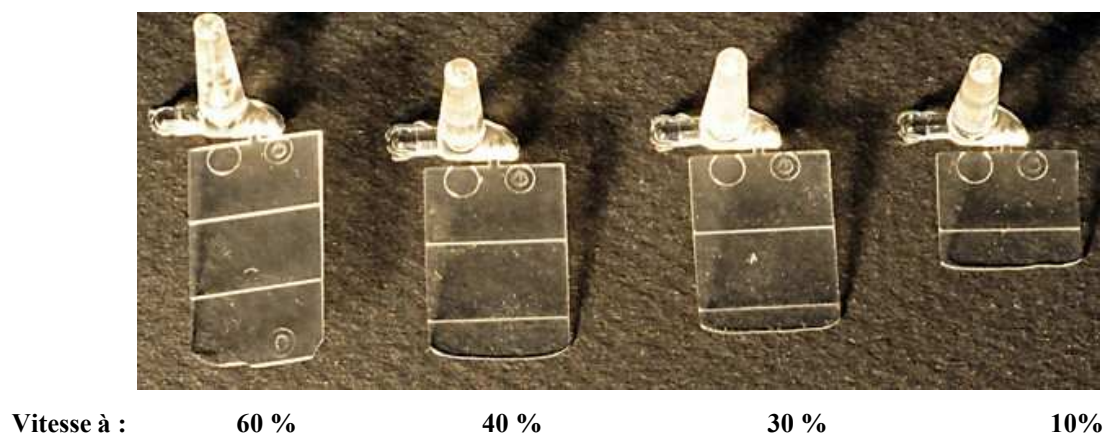


Figure 5-10 : Photo du profil de l'écoulement pour des sous remplissages, cas du PMMA.

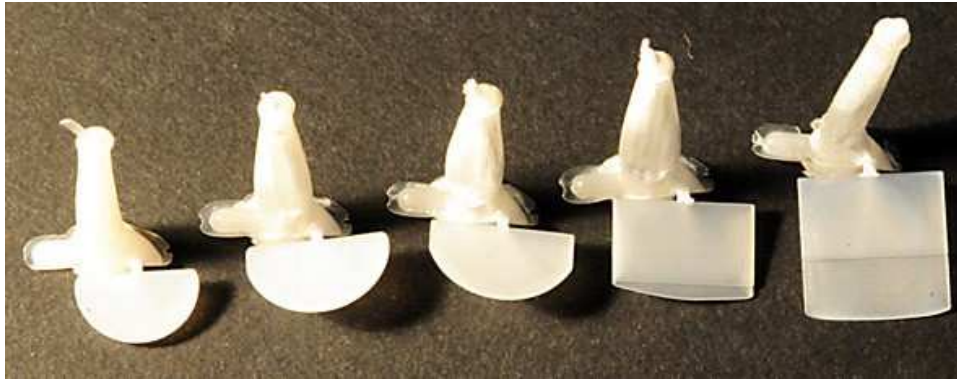


Figure 5-11 : Photo du profil de l'écoulement pour des sous remplissages, cas du PEHD.

### 5.1.3 Analyse des enregistrements

Le moule est instrumenté, comme nous l'avons précédemment détaillé, par un capteur de pression placé au niveau du canal et deux capteurs de pression et température placés de part et d'autre des extrémités du film dans le sens de l'écoulement. Nous relevons à chaque essai de microinjection les données de pression et de température.

Les profils de pressions et de températures représentatifs d'un essai sont présentés à la Figure 5-12 et un zoom sur la phase de remplissage sur Figure 5-13.

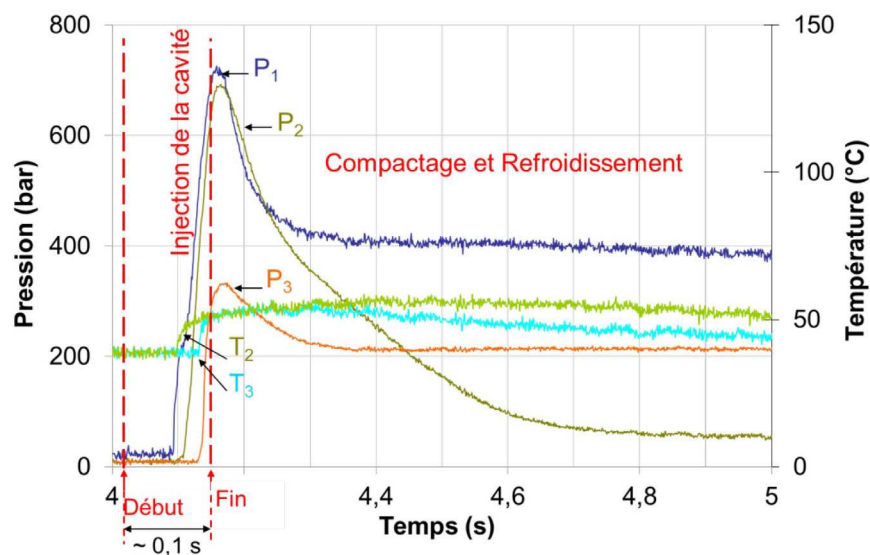
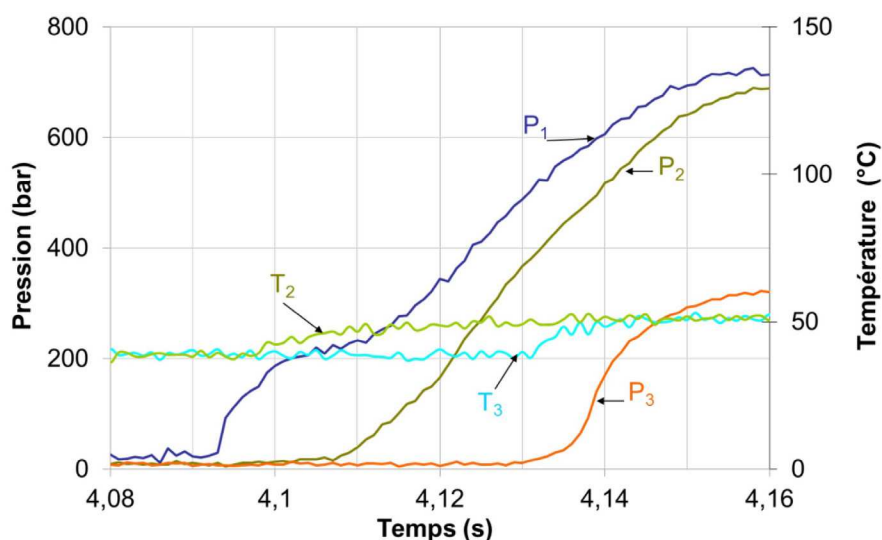


Figure 5-12 : Courbes des acquisitions dans le moule (pression et température) en fonction du temps, PMMA à 100% de la vitesse maximale.



**Figure 5-13 : Courbes de pression et de température en fonction du temps, PMMA à 100% de la vitesse maximale.**

La courbe  $P_1$ , correspondant au premier capteur touché dans le moule, présente des changements de pente brusques, ceci correspond au passage du polymère par le seuil puis par le premier et le second niveau d'épaisseur dans le film. Le second capteur est touché quand les courbes de pression  $P_2$  et de température  $T_2$  commencent à croître, de même pour le troisième capteur. Il est à noter que le démarrage des courbes de température apparaît plus nettement que celui de la pression correspondante. Les thermocouples semblent donc très réactifs. Après le démarrage des capteurs, les courbes de pressions continuent à croître jusqu'à un pic, engendré par la compression du polymère dans le moule alors que celui-ci est plein. Puis, les courbes décroissent progressivement jusqu'à des paliers de pression correspondant à la phase de maintien et de refroidissement dans le moule.

La température du moule avant injection est d'environ 45 °C. Le moule n'étant pas régulé, la chaleur est apportée par conduction du métal au contact de la buse qui est chauffée. Le passage du polymère sur le capteur entraîne une augmentation de la température.

Nous observons une croissance des courbes de température  $T_2$  et  $T_3$  lors du contact du polymère chaud avec les deux capteurs. Cette augmentation de température varie selon le matériau utilisé et la vitesse d'injection. Nous regarderons plus en détails ces variations dans ce qui suit.

Nous avons aussi la possibilité d'extraire les données sur la vitesse du piston d'injection. Toutefois, une erreur de transcription de ces données est détectée. En effet, l'acquisition de la



vitesse de déplacement du piston d'injection de la machine présente un retard de démarrage de quelques millièmes de secondes par rapport à la réalité. Cet écart n'est pas négligeable vu que les temps d'injection sont très petits. Nous corrigeons cette valeur par rapport à un calcul de déplacement du piston relatif à un volume dans l'empreinte du moule (mesure du déplacement du piston à vide avec un moule ouvert). Dans ce qui suit, nous présentons les courbes de vitesse du piston corrigées.

La Figure 5-14 et la Figure 5-15 présentent respectivement les courbes résultantes de l'injection du PMMA et du PEHD à 100 % de la vitesse maximale du piston d'injection, soit 296 mm/s.

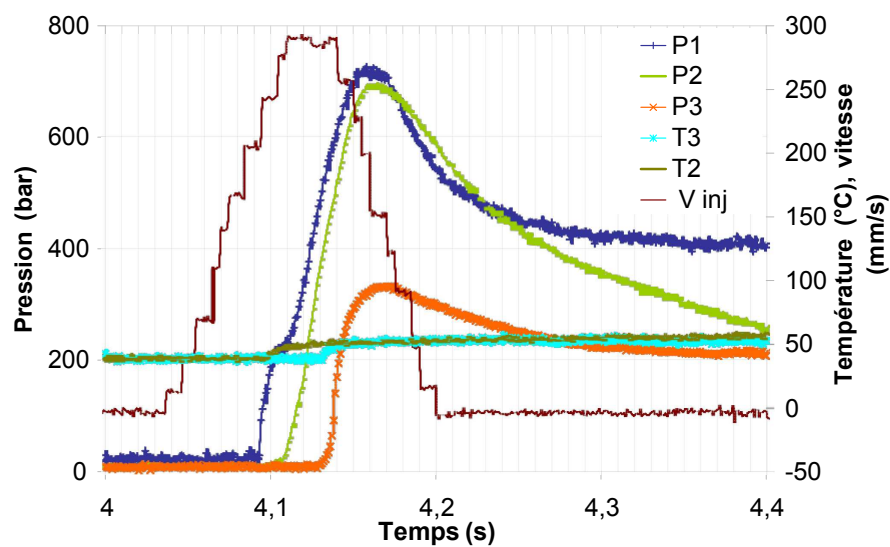


Figure 5-14 : Résultats PMMA pour une vitesse d'injection de 296 mm/s.

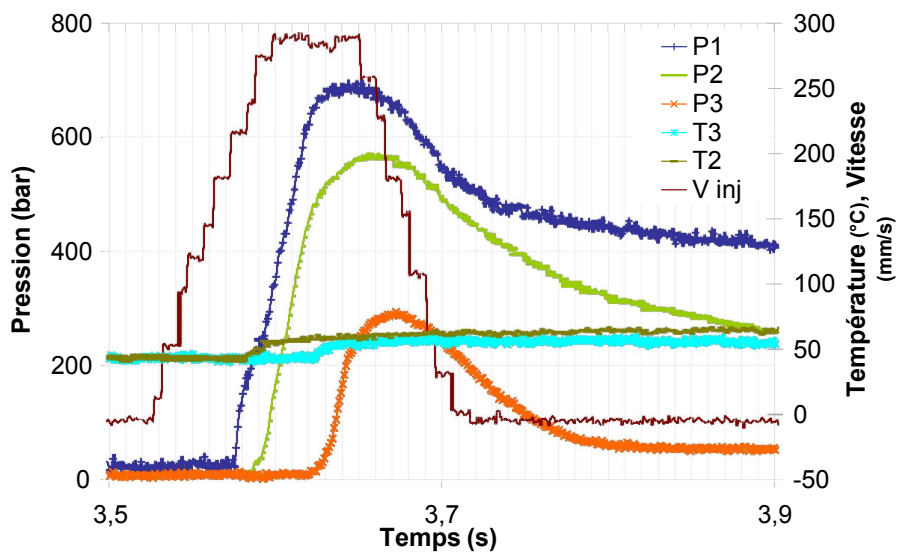


Figure 5-15 : Résultats PEHD pour une vitesse d'injection de 296 mm/s.

La vitesse du piston d'injection présente une phase d'accélération et une phase de décélération, qui dure dans les deux cas 0,07 à 0,08 s, suivie d'une phase à vitesse constante de 0,03 à 0,05 s, puis d'une phase de décélération de 0,06 s. L'évolution en escalier de ces deux phases est due à la chaîne d'acquisition.

Pour le PMMA comme pour le PEHD, les capteurs  $P_1$  et  $P_2$  sont touchés pendant la phase d'accélération, alors que le capteur  $P_3$  est touché pendant le palier à vitesse constante.

Nous exposons également quelques acquisitions pour des vitesses de piston d'injection différentes, Figure 5-16 et Figure 5-17. Nous constatons que moins la vitesse est importante, plus le palier à vitesse constante est large. Nous remarquons aussi que les courbes de pressions  $P_1$  et  $P_2$  se croisent et que dans certains cas  $P_2$  est supérieure à  $P_1$  en phase de maintien.

Nous remarquons également sur ces résultats, que les courbes de températures  $T_2$  et  $T_3$ , sont bien superposées dans le cas du PMMA alors qu'elles s'écartent dans le cas du PEHD.

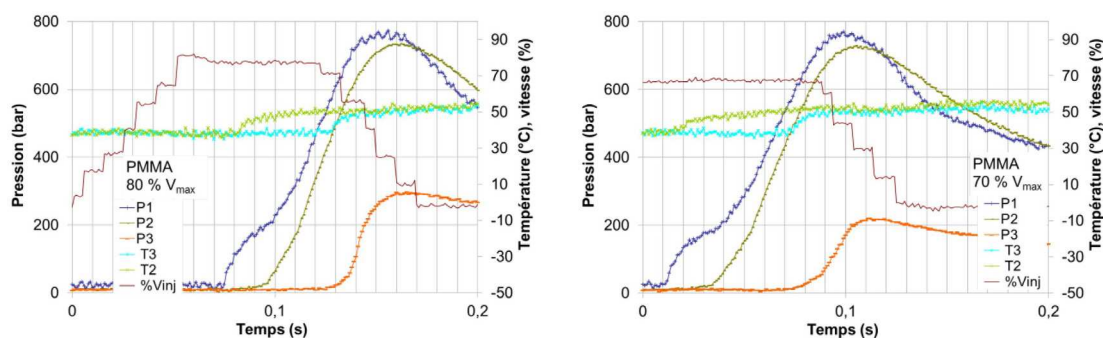


Figure 5-16 : Résultats PMMA pour les vitesses d'injection de 236,8 mm/s et 207,2 mm/s.

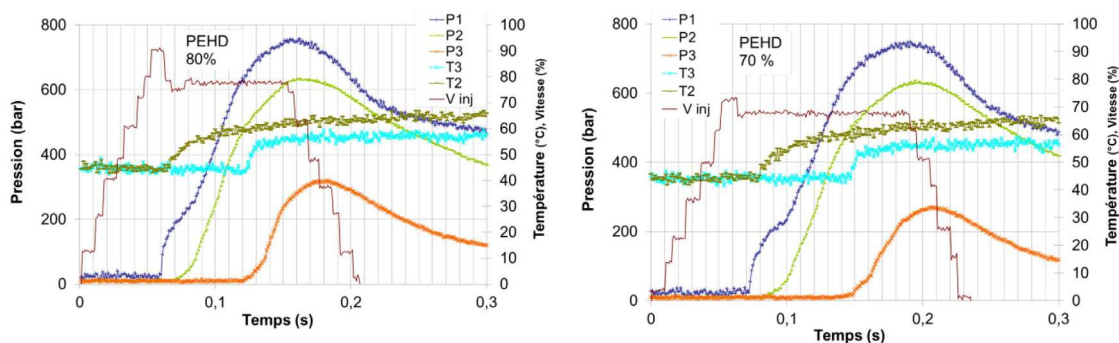


Figure 5-17 : Résultats PEHD pour les vitesses d'injection de 236,8 mm/s et 207,2 mm/s.

## 5.1.4 Exploitation des résultats de microinjection

### 5.1.4.1 Profils de pression

Nous nous intéressons dans cette section principalement à la phase de remplissage. L'instant de la fin du remplissage du moule n'étant pas facilement perceptible, nous relevons alors les pressions  $P_1$  et  $P_2$  quand le capteur  $P_3/T_3$  est touché. Nous présentons ces valeurs sur la Figure 5-18 pour différentes vitesses du piston d'injection et pour les deux matériaux étudiés.

Dans les cas du PMMA, plus les débits d'injection sont importants, moins les pressions sont élevées alors que le contraire serait plus intuitif. Nous interprétons ce phénomène par l'effet d'un échauffement de la matière à forts débits. Nous pouvons aussi supposer que lorsque le débit augmente, le temps de remplissage diminue, et donc le refroidissement au contact du moule est moins important. Le matériau injecté est donc comparativement plus fluide, ce qui conduit à une pression moindre. Vu que le PMMA a une grande énergie d'activation, il est fortement sensible à la variation de température. Même si les valeurs de  $T_2$  quand  $T_3$  est touché sur les différents cas de vitesse de remplissage montrent que la température évolue très peu, nous rappelons que la température mesurée est intermédiaire entre celle du polymère et celle du métal.

Dans le cas du PEHD, nous pouvons considérer que la pression évolue peu avec les différents débits de remplissage. Nous remarquons également que les niveaux de pressions sont équivalents pour le PMMA et le PEHD.

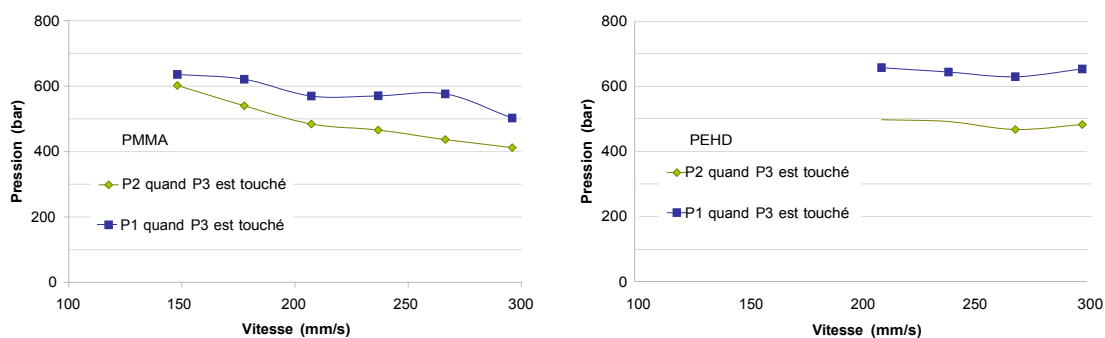


Figure 5-18 : Profils des pressions  $P_1$  et  $P_2$  quand le capteur  $P_3$  est touché, cas du PMMA et du PEHD.

#### 5.1.4.2 Profils de température / Effet de la dissipation de chaleur

Nous nous intéressons à la variation de la température  $\Delta T$  avant et après le contact du polymère avec les capteurs  $T_2$  et  $T_3$ . La Figure 5-19 présente les évolutions  $\Delta T_2$  et  $\Delta T_3$  avec la vitesse du piston d'injection. L'augmentation de l'écart de température avec le débit d'injection est due à la dissipation de chaleur qui est fonction des taux de cisaillement dans le film.

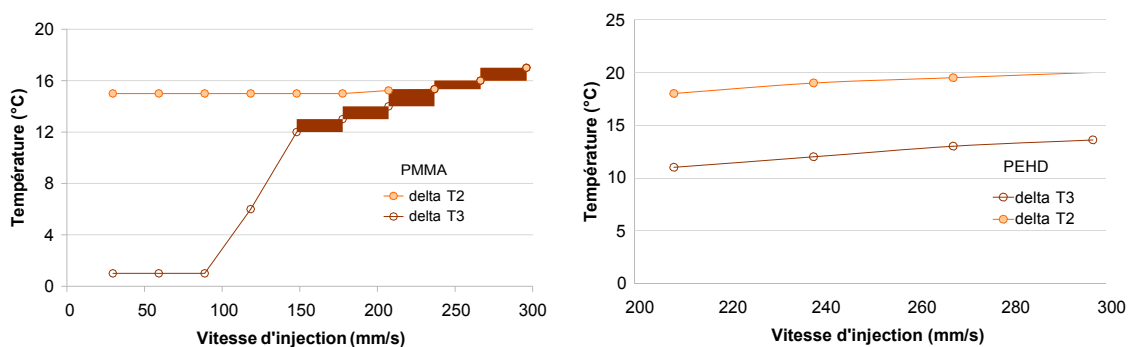


Figure 5-19 : Profils de températures à différentes vitesses du piston d'injection, cas du PMMA et du PEHD.

#### 5.1.4.3 Détermination des débits d'injection

Le débit d'injection est une donnée importante pour les calculs d'écoulement que nous allons réaliser au paragraphe suivant. Il importe donc de le déterminer avec précision. Nous pouvons utiliser le débit volumique délivré par le piston d'injection, car nous connaissons la vitesse de ce piston. Cependant, notre calcul commence à l'entrée du moule, et le débit volumique ici peut être inférieur au débit au niveau du piston en raison de la compressibilité du polymère dans le pot d'injection. Nous allons donc utiliser les capteurs de pression/température pour identifier les instants de passage du front de matière, et déterminer grâce au volume entre capteurs un débit « entre capteurs ».

La Figure 5-20 montre les évolutions des temps entre les deux capteurs en fonction des vitesses du piston d'injection pour le PMMA et le PEHD. Nous observons qu'il y a un écart entre les deux évolutions. Il semble que le PEHD s'écoule moins rapidement que le PMMA. Ceci pourrait être expliqué par la compressibilité qui serait plus importante dans le cas de l'injection du PEHD. En effet, les niveaux de pressions sont un peu plus importants dans le

cas du PEHD, et de plus ce polymère est plus sensible à des variations de pression (voir courbes PVT sur les figures 4-2 et 4-3). Dans ce cas, le temps qui est le rapport entre le volume injecté et le débit se trouve augmenté du volume compressé.

Nous présentons les différents débits d'injection dans le Tableau 5-2 en tenant compte, des volumes mesurés sur les pièces injectées.

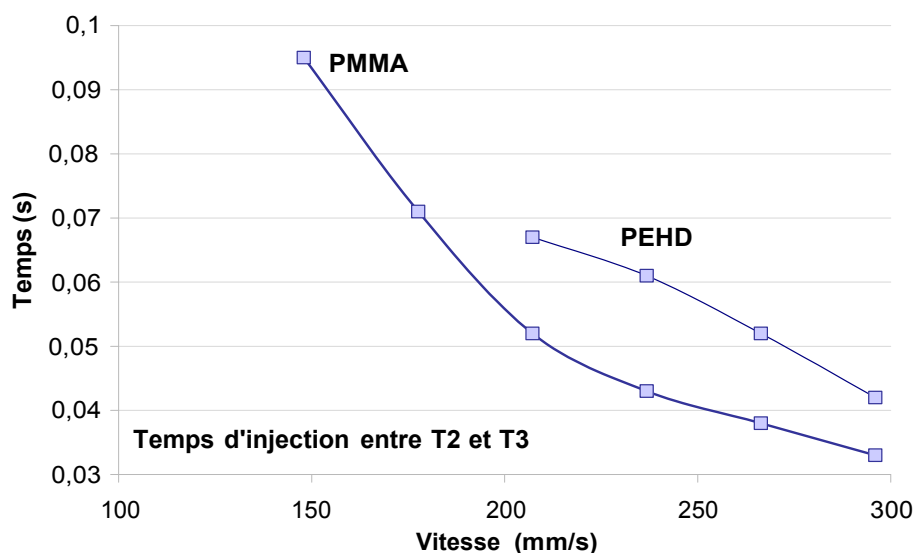


Figure 5-20 : Temps d'injection entre les capteurs  $T_2$  et  $T_3$  pour le PMMA et le PEHD et pour différentes vitesses du piston d'injection.

Matériaux	PMMA	PEHD
Vitesse du piston d'injection (mm)	$Q_{film} \text{ (mm}^3\text{/s)}$	$Q_{film} \text{ (mm}^3\text{/s)}$
296	2618,27	2217,73
266,4	2273,76	1788,463
236,8	2009,37	1524,593
207,2	1644,69	1388,06
177,6	1163,13	
148	888,95	

Tableau 5-2 : Variation des débits d'injection pour les différents cas de mise en œuvre.

## 5.2 Simulation de la microinjection

### 5.2.1 Présentation de Rem3D

Le logiciel de simulation tridimensionnelle par éléments finis, Rem3D (version 2010), a été utilisé pour réaliser les simulations de microinjection en se basant sur les données des essais expérimentaux.

La matière suit une loi rhéologique de Carreau-Yasuda avec une thermodépendance suivant la loi d'Arrhenius. Ces données ont été obtenues au chapitre 3. Nous confronterons les résultats calculés aux mesures de pression dans le moule, et nous pourrions ainsi discuter de la validité des données rhéologiques, et des conditions d'écoulement.

Le calcul est compressible ou incompressible. Il n'y a pas de prise en compte du glissement ni de la piezodépendance. Enfin, la température est imposée aux parois et en entrée.

Le fonctionnement du logiciel Rem3D réside dans trois solveurs :

- Un solveur mécanique basé sur les équations de Stokes qui permet de calculer la pression  $P$  et la vitesse  $V$  pour un contact collant. Equation elliptique.

$$\nabla \cdot \sigma : \dot{\epsilon} dV = \int_{\partial V} \vec{P} \cdot \vec{n} dS$$

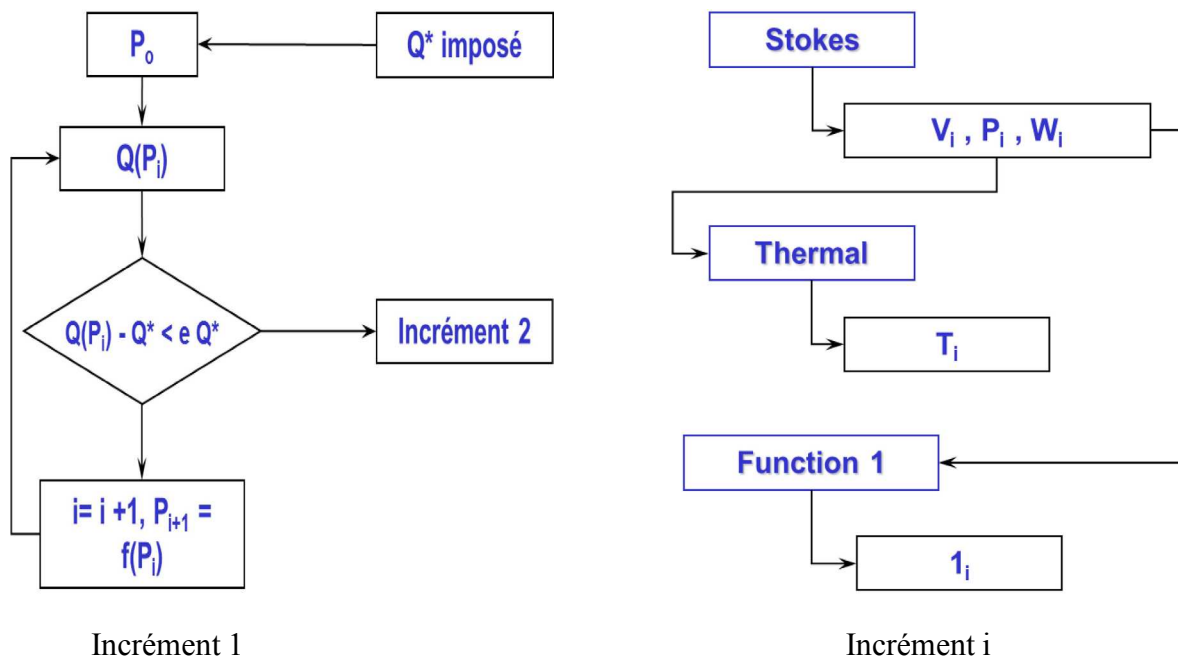
- Un solveur thermique qui résout l'équation de la chaleur avec une température imposée à la paroi. Equation hyperbolique.

$$\rho c \frac{dT}{dt} + \lambda \Delta T = \dot{W}$$

- Un solveur de l'équation de transport de la fonction du taux de présence (méthode eulérienne VOF), selon le modèle de Taylor-Galerkin. Equation parabolique.

$$\frac{\partial \mathbb{1}_f}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbb{1}_f \vec{v} = 0$$

Une initialisation à pression et débit imposés est réalisée avant le démarrage des solveurs. Les organigrammes ci-dessous décrivent les étapes du calcul [Documentation Transvalor]



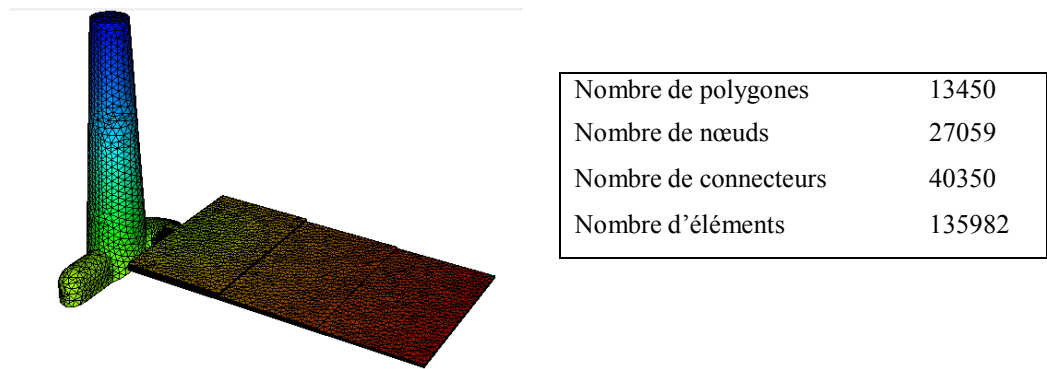
## 5.2.2 Maillage

Nous importons la géométrie à partir de la CAO réalisée sur l'outil de conception Ideas. La pièce est composée de la carotte, du canal d'alimentation et de la partie film avec les trois paliers d'épaisseurs, Figure 5-21.

Nous utilisons le maillage volumique intégré du logiciel Rem3D. Le maillage est tétraédrique. La taille de mailles a été contrôlée afin d'obtenir un bon ratio précision / temps de calcul. Des tests ont été réalisés pour valider cette étape d'optimisation du maillage. La zone la plus cruciale est la dernière partie du film, d'épaisseur 0,2 mm. Nous avons environ 6 mailles dans l'épaisseur, ce qui n'est pas extrêmement important pour capturer les gradients thermiques en particulier. Partout ailleurs, le nombre de maille est tout à fait satisfaisant.

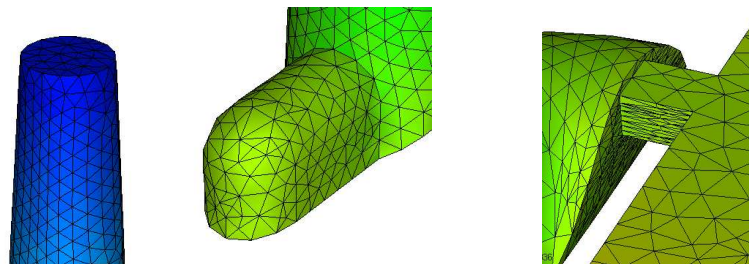
Nous optons pour un maillage anisotrope, avec des éléments aplatis dans l'épaisseur. Ceci permet de gagner en temps de calcul tout en assurant une bonne précision dans les résultats.

Le nombre d'éléments que comprend le maillage retenu, ainsi que d'autres informations sont indiqués ci-dessous.

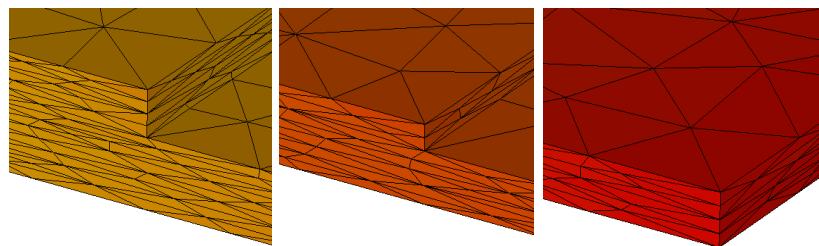


**Figure 5-21 : Maillage de la géométrie**

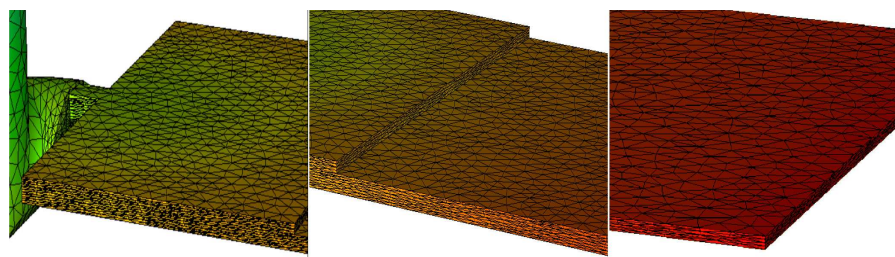
Le détail des maillages dans les différentes parties de la pièce est donné par la Figure 5-22 la Figure 5-23 et la Figure 5-24.



**Figure 5-22 : Détail du maillage au niveau de la carotte, du canal et du seuil**



**Figure 5-23 : Détail du maillage au niveau de l'épaisseur du film**



**Figure 5-24 : Détail du maillage au niveau du film**



## 5.2.3 Visualisation des résultats Rem3D

### 5.2.3.1 Données du calcul

Le calcul utilisé est compressible suivant une loi de Tait, avec une rhéologie suivant une loi Carreau Yasuda et une thermodépendance selon la loi Arrhenius (paramètres proches de ceux du PEHD). La fiche matière considérée comprend les informations relatives aux données matière, Tableau 5-3.

Données rhéologiques Carreau - Yasuda	$\eta_0$	MPa.s	$1,2 \cdot 10^{-3}$
	m		0,26
	$\tau_s = \eta/\lambda$	MPa	0,12
	a	-	0,5
	$\beta = E/R$	K	1064
	$T_{ref}$	K	463
Données PVT	Données du PEHD (§2.2.2)		
Données thermiques	Masse volumique	mm <sup>3</sup> /s	0,96
	Chaleur massique	J/kg.K	2,18
	Conductivité	W/m.K	0,33
Données procédés	Température de figeage	°C	117
	Température de transformation optimale	°C	240
	Température d'éjection	°C	95
	Taux de cisaillement max	s <sup>-1</sup>	65000
	Contrainte de cisaillement max	MPa	0,22
	Température de moule optimale	°C	75
	Température d'injection	°C	265
	Température de moule	°C	30

Tableau 5-3 : Données matière pour le calcul Rem3D

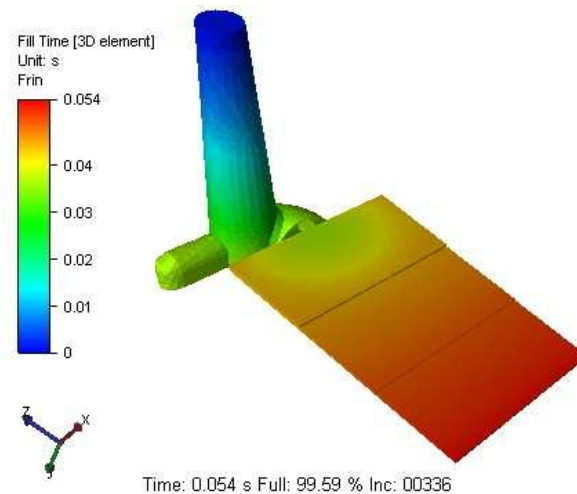
Nous injectons la matière plastique à 265 °C dans un moule à 30 °C. Nous travaillons à débit variable en fonction du temps de remplissage selon les valeurs du Tableau 5-4.

<b>Temps</b>	<b>s</b>	<b>0,045</b>	<b>0,058</b>	<b>0,11</b>
<b>Débit</b>	<b>mm<sup>3</sup>/s</b>	<b>5665</b>	<b>3268</b>	<b>2451</b>

**Tableau 5-4 : Valeurs des débits en fonction du temps de remplissage de la pièce**

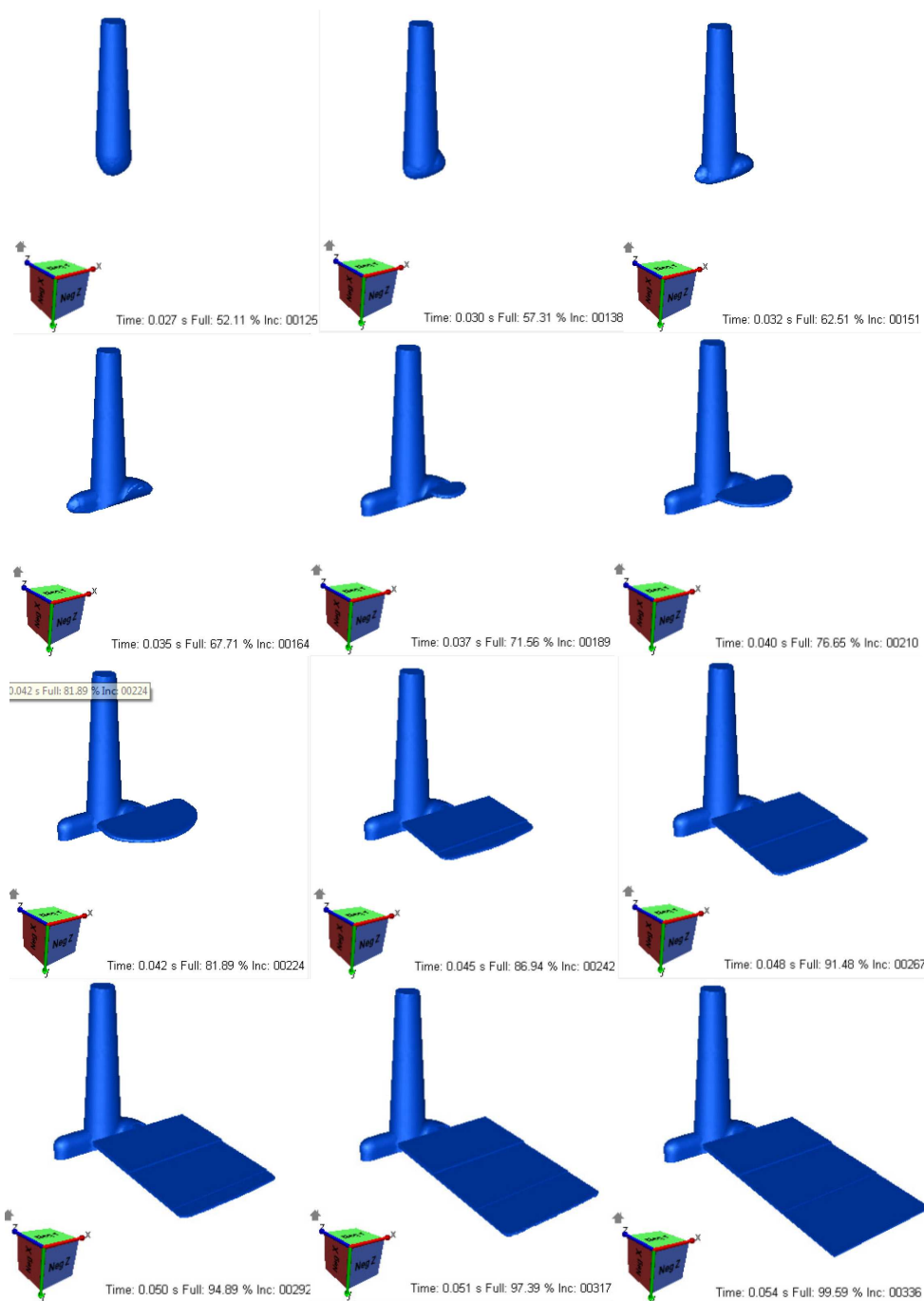
### 5.2.3.2 Remplissage

La Figure 5-25 présente la position du front de matière en fonction du temps. La cartographie des couleurs correspond à l'avancement du front à chaque instant du remplissage. Le remplissage de la pièce se fait en 0,054 s. Par rapport au volume de la pièce calculé, qui est de 295 mm<sup>3</sup>, cela fait un débit moyen d'injection qui est de 3,86 cm<sup>3</sup>/s.



**Figure 5-25 : Remplissage : avancement du front de matière en fonction du temps**

Les étapes du remplissage sont présentées par la Figure 5-26. Nous commentons dans ce qui suit les instants critiques lors du remplissage. Le canal vertical est rempli au bout de 0,027 s, et il représente 52 % du volume de la pièce. A 0,035 s, la matière passe le seuil, tandis que le bout arrondi du canal n'est pas encore entièrement rempli, nous avons un volume rempli de 68 %. A 0,037 s, ce qui correspond à 71,5 % du remplissage, le front de matière avance sur le film et décrit un demi-cercle. Cette configuration en arc de cercle continue jusqu'à 0,04 s, où nous atteignons la fin du premier palier du film, le front de matière accélère sur les côtés et ralenti face au changement d'épaisseur du deuxième palier du film. A partir de 0,45 s, le front de matière devient de plus en plus linéaire et nous finissons le remplissage dans cette configuration.

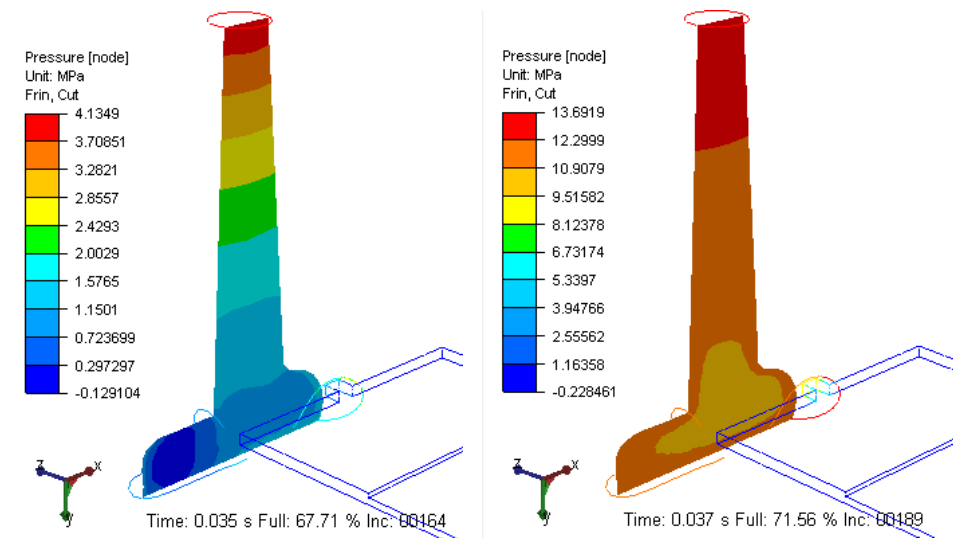


**Figure 5-26 : Chronologie du remplissage, avancement du front de matière en fonction du temps**

### 5.2.3.3 Pression

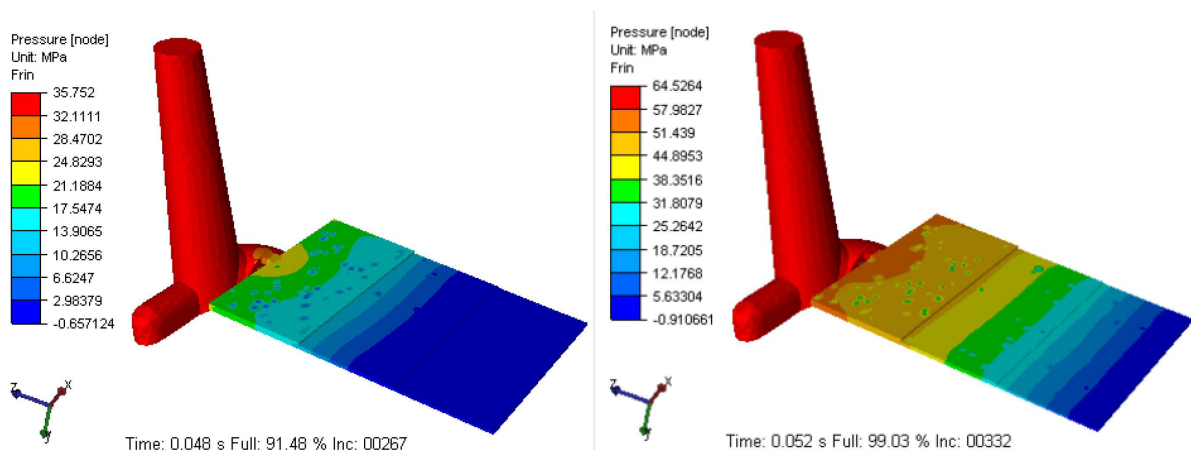
Nous nous intéressons dans un premier temps à l'évolution de la valeur de la pression dans le système d'alimentation, carotte plus canal, plus seuil, quand la matière dépasse le seuil. Ceci permet de déterminer la perte de charge dans le système d'alimentation avant de commencer

le remplissage du film. Nous présentons sur la Figure 5-27 les valeurs de la pression sur une coupe verticale à 67,7 % et à 71,5% du volume total. Selon les résultats affichés, il faut environ 136 bar pour remplir le système d'alimentation.



**Figure 5-27 : Evolution de la pression dans le système d'alimentation en fonction du remplissage.**

Nous regardons maintenant l'évolution de la pression dans le film au cours du remplissage. La Figure 5-28 montre la carte de l'évolution de la pression à 91,5 et 99 % du remplissage. La pression d'injection nécessaire au remplissage de la pièce est de 645 bar.



**Figure 5-28 : Evolution de la pression dans la pièce en fonction du remplissage.**

Nous présentons de façon plus détaillée l'évolution de la pression dans le film au cours du remplissage. La Figure 5-29 montre les évolutions de la pression en fonction du temps pour

trois positions de la pièce : à l'entrée de la carotte, à l'extrémité du canal transversal et au niveau du seuil. La Figure 5-30 montre l'évolution du front de matière.

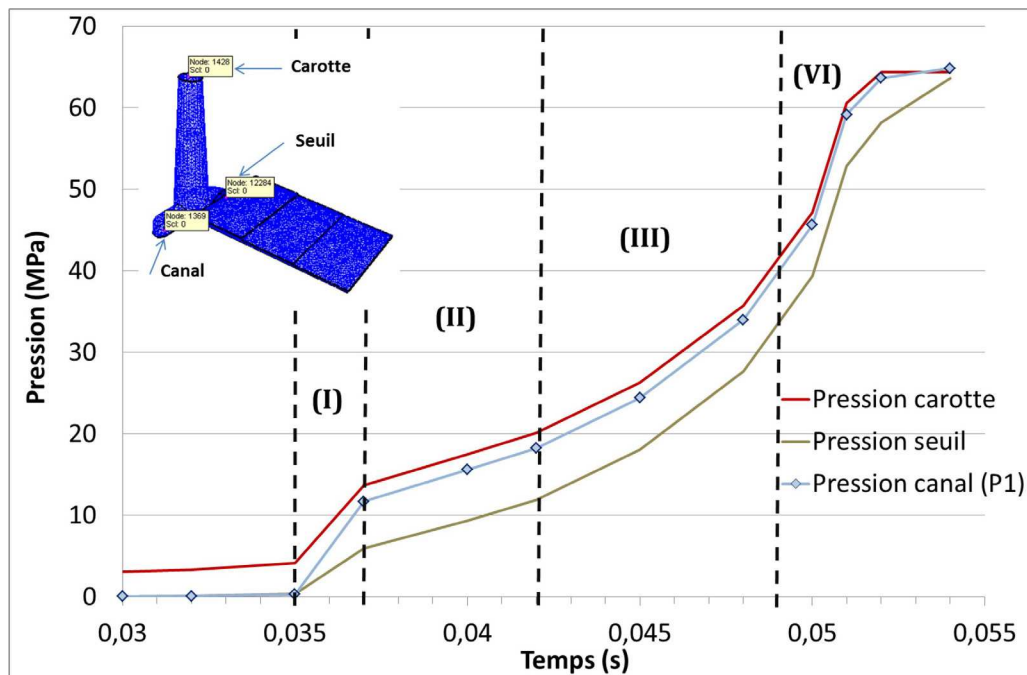
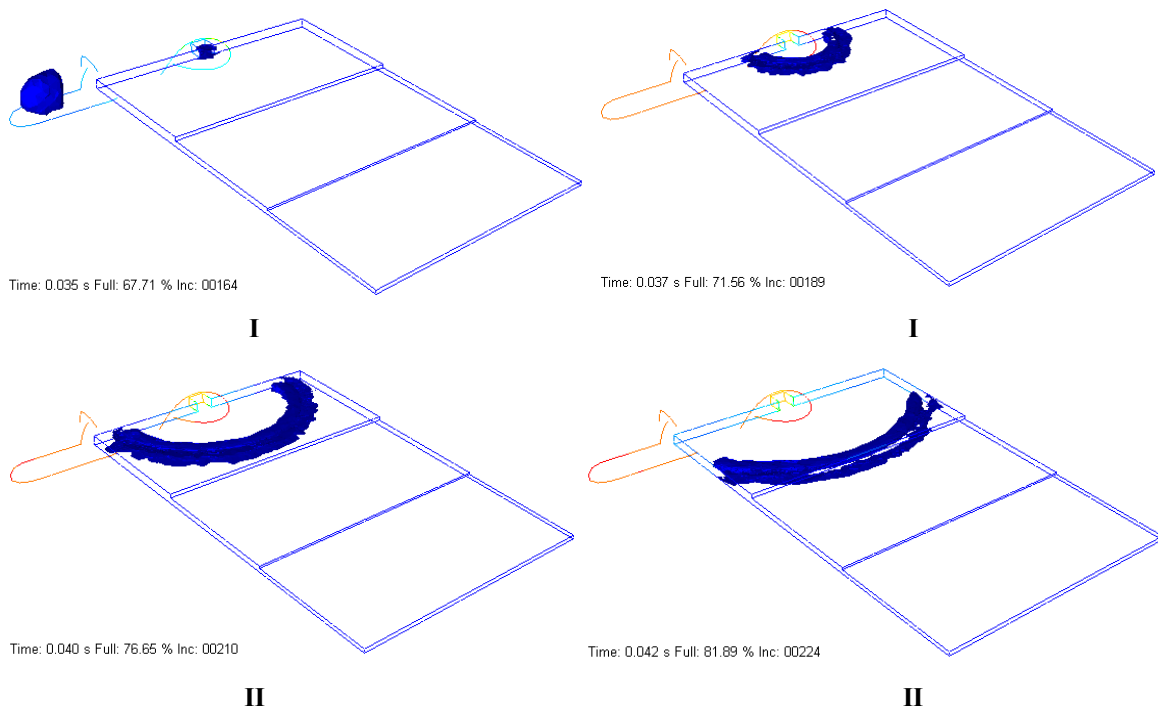
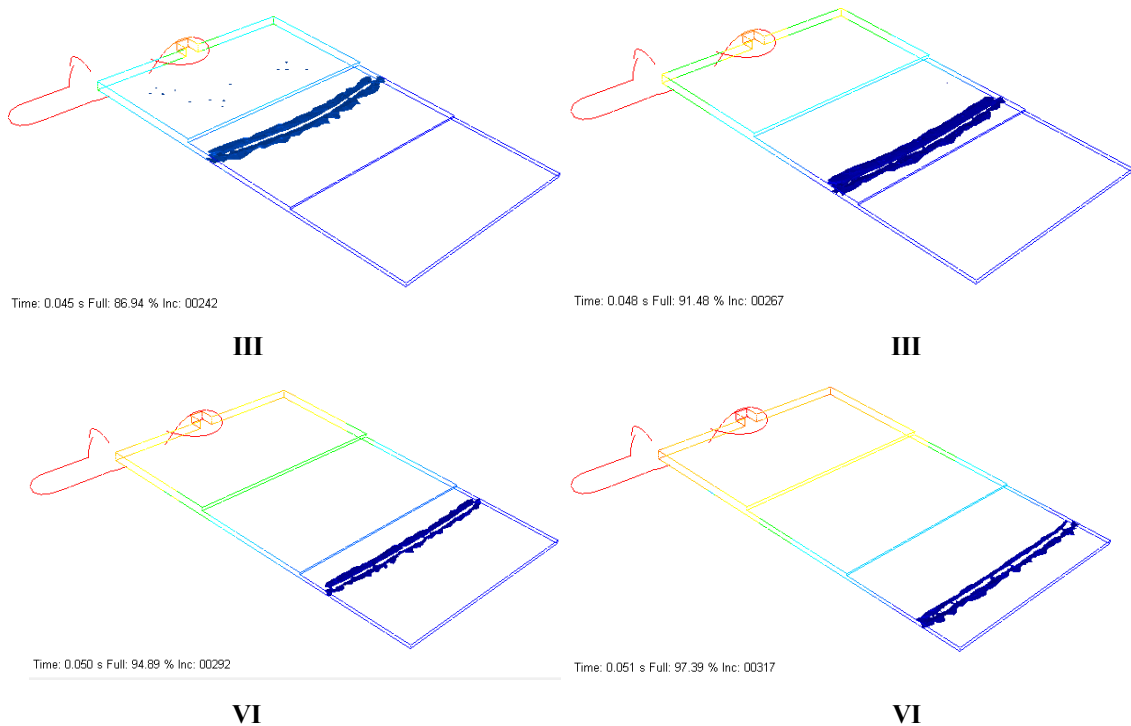


Figure 5-29 : Evolution de la pression en fonction du temps au niveau du système d'alimentation.



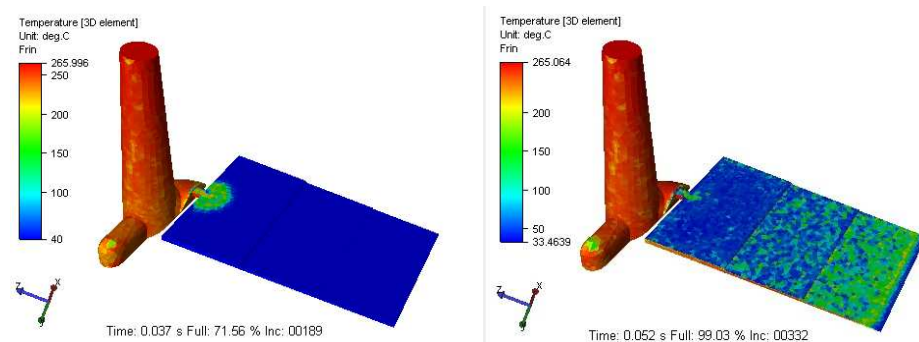


**Figure 5-30 : Evolution de la pression dans le film en fonction du remplissage**

Entre 0 et 0,035 s, la pression à l'entrée de la carotte augmente faiblement, car la section de passage est large. A  $t = 0,035$  s, la matière rentre dans le seuil, et les pressions augmentent fortement en raison de la faible section de ce seuil (section I sur la Figure 5-29). La pente s'infléchit ensuite pendant le remplissage de la première partie de la plaque (section II). Elle augmente au passage du front dans la deuxième partie de la plaque, qui est remplie dans la section III. La pente augmente encore au passage du front dans la dernière partie de la plaque, d'épaisseur encore plus faible. La stagnation finale de la pression est sans doute un artéfact de calcul lié à l'approche eulérienne et la représentation de la présence du polymère par la fonction taux de présence, qui est soumise à diffusion numérique.

#### 5.2.3.4 Température

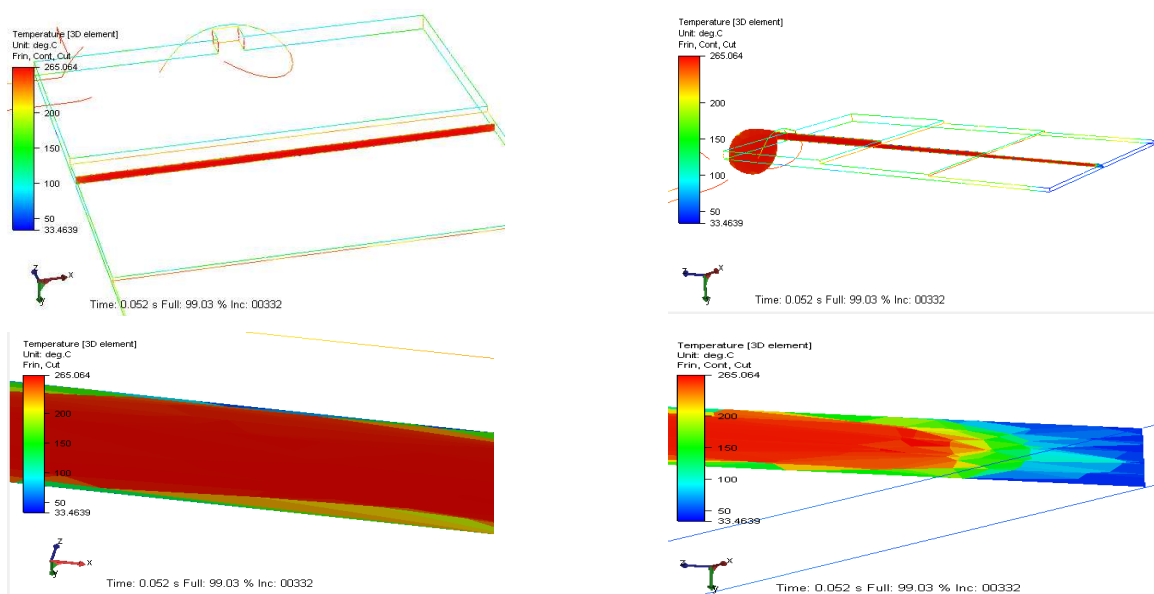
Nous exposons les évolutions de la température dans la pièce en fonction du temps de remplissage entre le début et la fin du remplissage du film, Figure 5-31.



**Figure 5-31 : Evolution de la température dans la pièce en fonction du remplissage.**

La température varie entre un minimum de 33 °C à un maximum de 266 °C. La température d'injection est de 265 °C et la température de paroi imposée est de 30 °C. Au cours du remplissage, il n'y a pas d'échauffement important dans l'épaisseur du film.

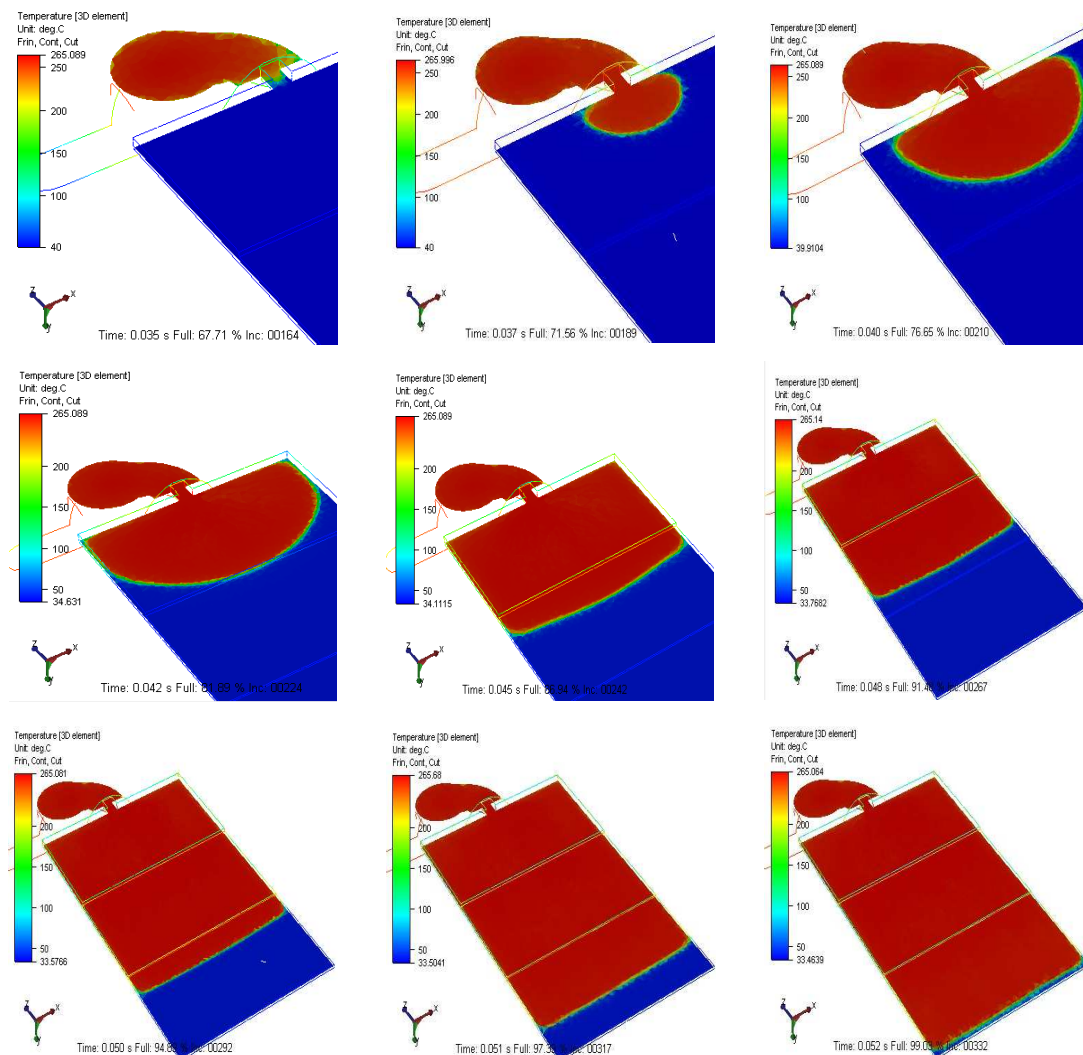
La température à la paroi baisse très rapidement alors qu'à cœur le fluide est encore très chaud. Nous réalisons une coupe longitudinale et une coupe transversale sur la pièce suivant les plans de la Figure 5-32, et nous visualisons la variation de la température dans l'épaisseur.



**Figure 5-32 : Cartographie des températures sur deux coupes transversale et longitudinale de la pièce**

Nous accordons un intérêt particulier à la visualisation de l'avancement du front de matière en valeurs de température. La Figure 5-33 montre la chronologie de remplissage avec les iso valeurs de température sur une coupe horizontale du film. Les valeurs de température

évoluent en iso lignes de la même façon que pour l'avancement du front de matière en fonction du temps.

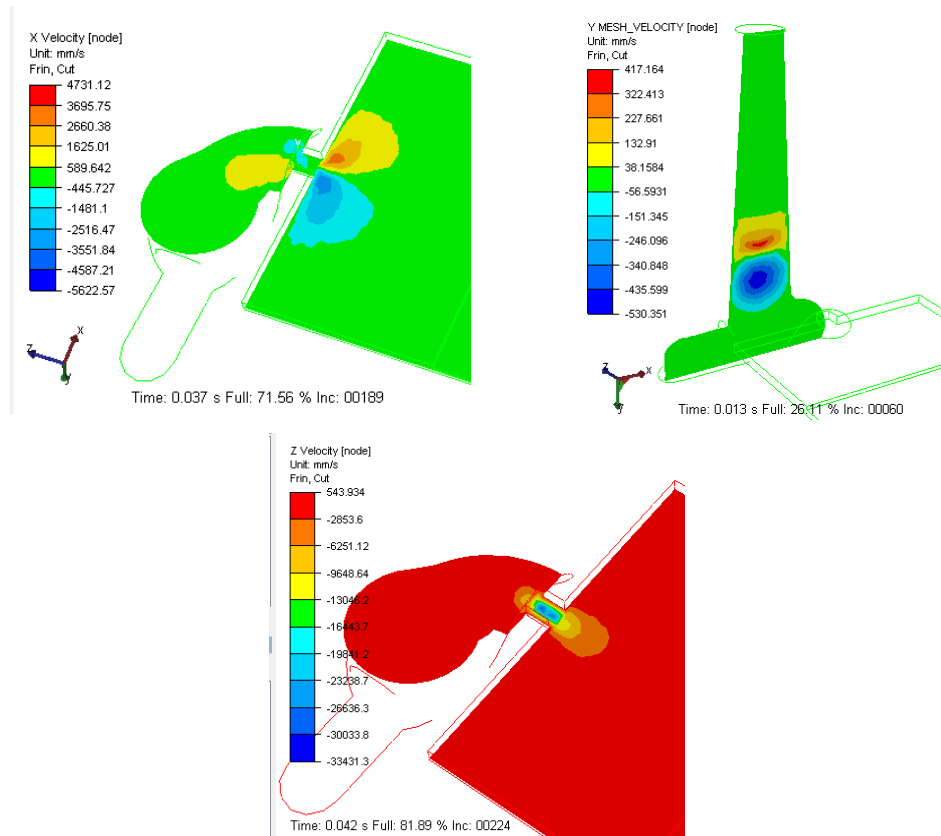


**Figure 5-33 : Chronologie de l'évolution de la température dans le film**

### 5.2.3.5 Profils de vitesses

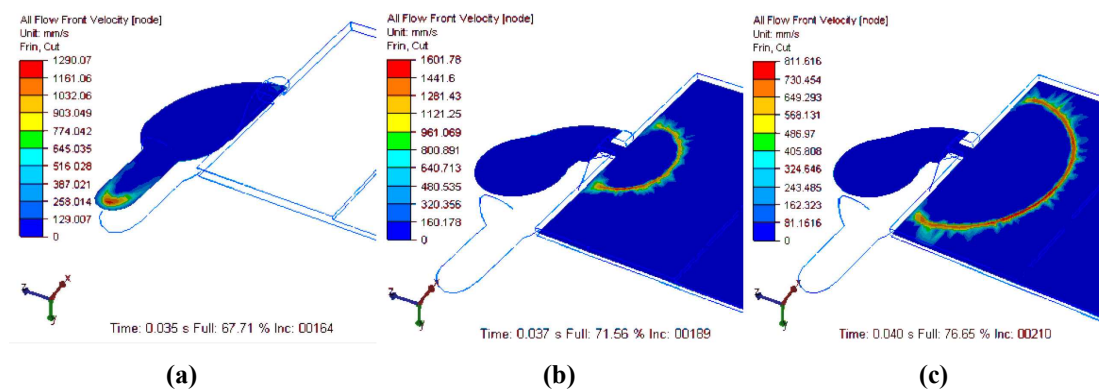
Nous affichons les profils de vitesse suivant le sens de l'écoulement dans le canal (selon Y) et dans le film (selon X et selon Z), Figure 5-34. Les vitesses au niveau du seuil selon X atteignent + 4730 mm/s et – 5623 mm/s. Au passage du seuil, la vitesse selon Z atteint – 33431 mm/s, soit 33431 mm/s dans le sens de l'écoulement. Alors que en amont du seuil, la vitesse selon Y atteint 500 mm/s. C'est la variation entre la section du canal et celle du seuil qui engendre ces sauts de valeurs de vitesse.





**Figure 5-34 : Profils de vitesses selon X, selon Y et selon Z sur deux coupes horizontale et transversale de la pièce**

Nous présentons également l'évolution de la vitesse du front de matière en fonction du remplissage, Figure 5-35. La vitesse lorsque le front de matière passe l'entrée du film est de 1602 mm/s (b), ensuite la vitesse décroît au fur et à mesure que le front de matière avance (c,d). Elle augmente jusqu'à 1918 mm/s lorsque la matière passe le premier palier d'épaisseur allant de 0,5 mm à 0,3 mm. Et elle augmente de nouveau jusqu'à 2240 mm/s lors du passage du troisième palier d'épaisseur de 0,3 mm à 0,2 mm.



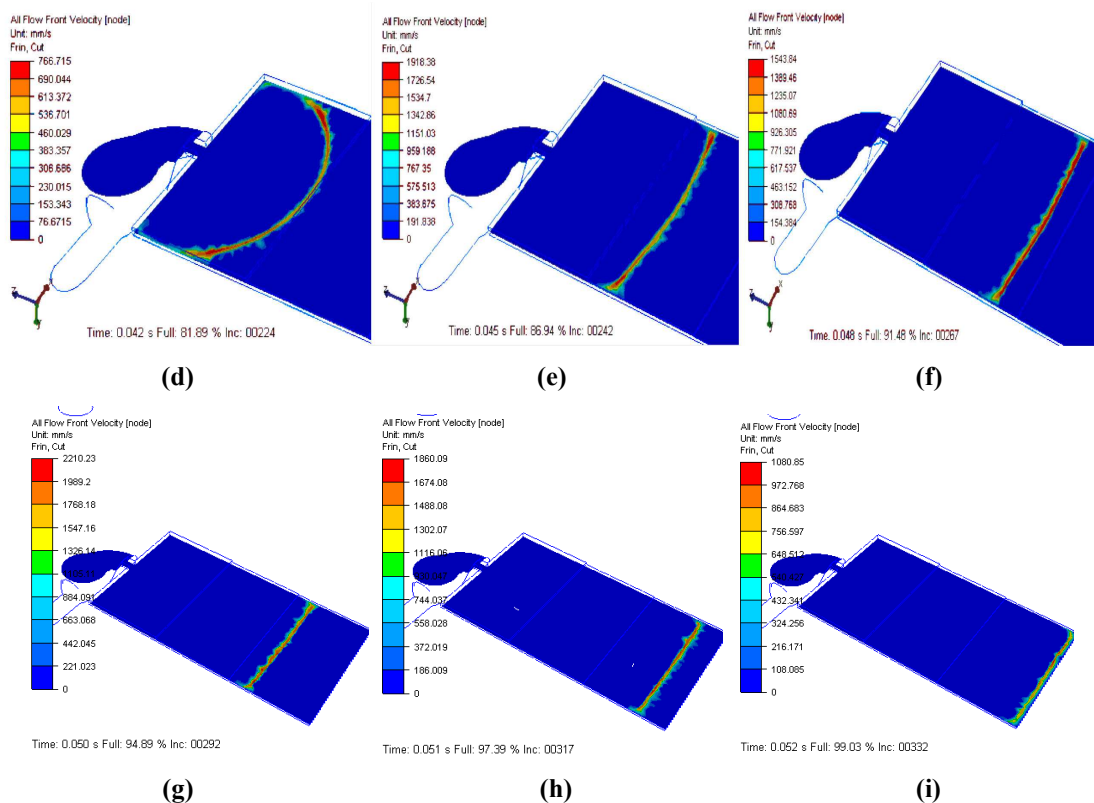


Figure 5-35 : Evolution de la vitesse moyenne du front de matière en fonction du remplissage

## 5.3 Confrontation avec les essais de microinjection

### 5.3.1 Paramètres d'entrée

Les confrontations portent sur le PEHD, avec les deux jeux de données de lissage de la loi de Carreau Yasuda déterminés lors de l'étude expérimentale, et sur le PMMA, avec une thermodépendance à l'aide de la loi d'Arrhenius.

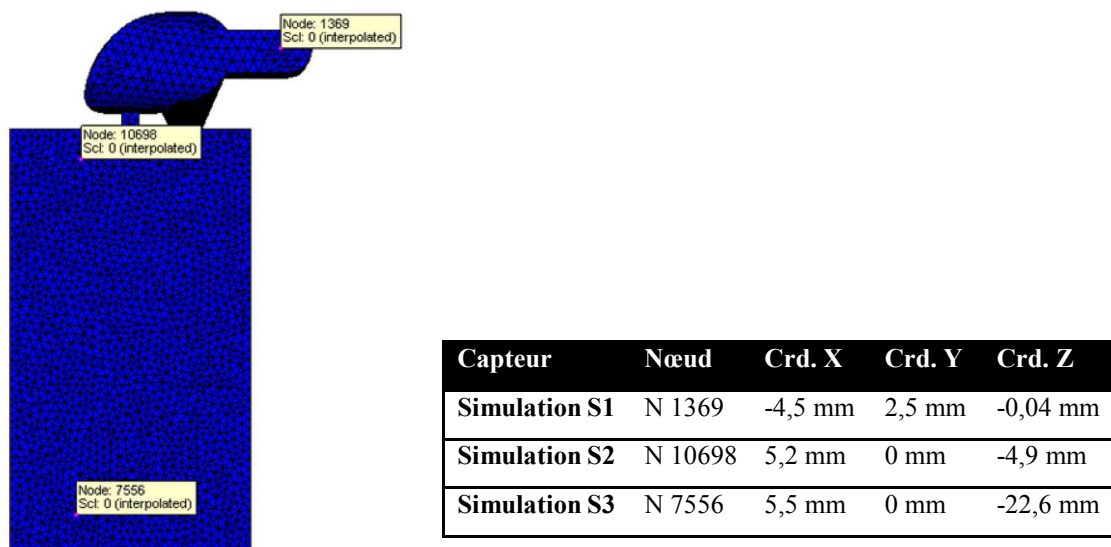
Nous rappelons les données dans le Tableau 5-5. Les données de la loi de Tait, de thermique et du procédé restent inchangées par rapport aux valeurs données au Tableau 5-3.

Le débit de remplissage est variable par palier fonction du pourcentage du remplissage. Nous testerons différentes valeurs de débits et de pourcentages du remplissage pour ajuster au mieux les instants de passage sur les capteurs issus du calcul avec les instants mesurés sur les enregistrements.

			PEHD CY1	PEHD CY2	PMMA
Données rhéologiques Carreau – Yasuda	$\eta_0$	MPa.s	$1,2 \cdot 10^{-3}$	$1,2 \cdot 10^{-3}$	$6,2 \cdot 10^{-3}$
	m		0,26	0,07	0,25
	$\tau_s = \eta/\lambda$	MPa	0,12	0,3	0,12
	a		0,72	0,5	0,76
	$\beta = E/R$	K	1063	1063	21309
	$T_{ref}$	K	463	463	473

**Tableau 5-5 : Données rhéologiques selon les deux lissages des courbes expérimentales pour le PEHD**

C'est pourquoi nous définissons des capteurs au niveau du maillage positionnés comme dans le moule réel. Les positions et les coordonnées de ces capteurs sont données par la Figure 5-36.



**Figure 5-36 : Positions des capteurs S1, S2 et S3 sur le maillage et coordonnées dans le repère de la pièce.**

### 5.3.2 Confrontation sur la forme du front de matière

Nous comparons les résultats de sous remplissages expérimentaux avec ceux issus du calcul, Figure 5-37. Nous retrouvons une bonne corrélation entre les deux résultats. Toutefois, il y a un léger décalage vers la fin du remplissage pour les pièces réelles. Le front n'est pas parfaitement linéaire vers la fin contrairement à ce que prédit le calcul. Ceci peut être dû à la

présence des traces des capteurs de pression/température qui sont placés à droite de la pièce (par rapport à l'image). La différence est tout de même assez faible.

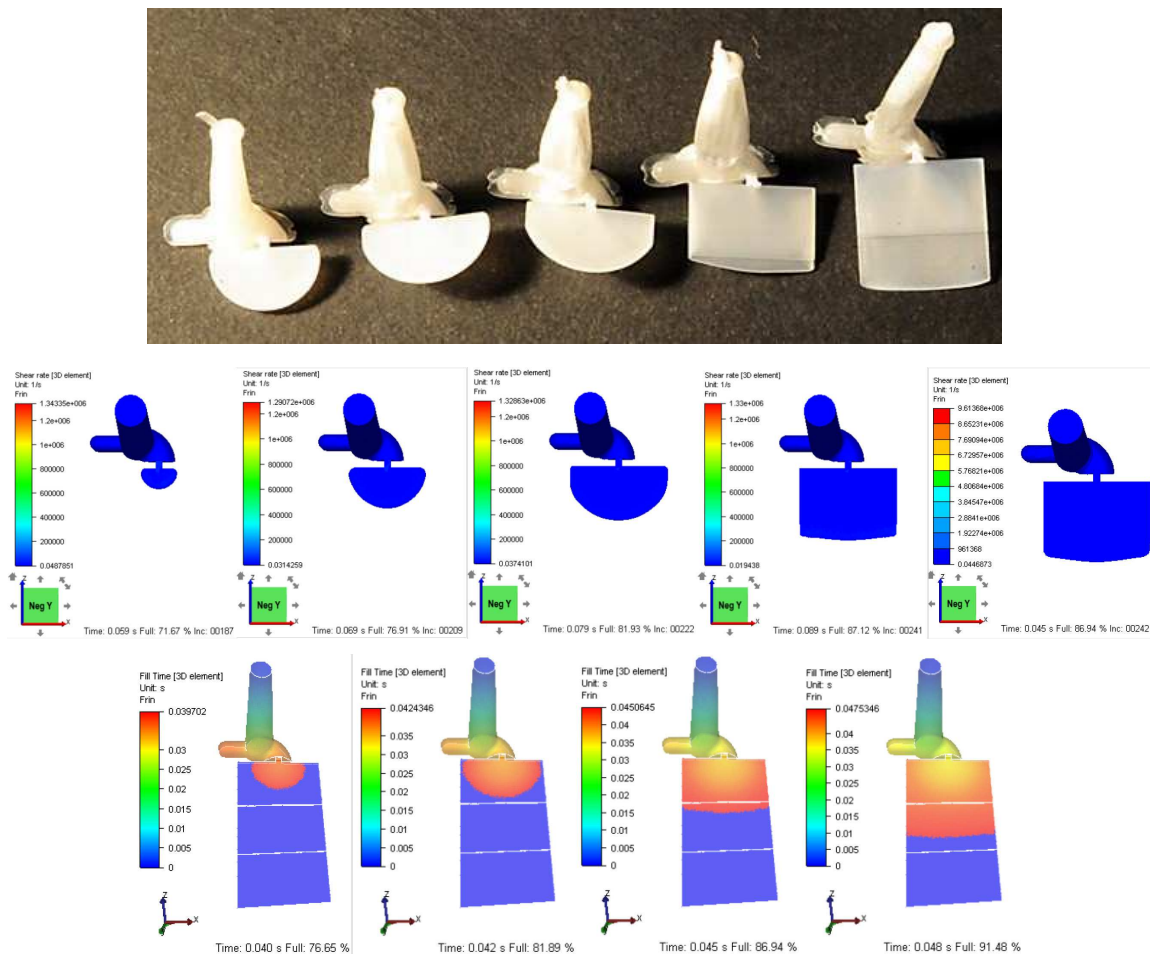


Figure 5-37 : Comparaison des sous remplissages expérimentaux et calculés, PEHD

### 5.3.3 Effet de la compressibilité sur le calcul

Nous travaillons avec le PEHD pour réaliser les confrontations entre le calcul numérique et les résultats expérimentaux.

La température du polymère à l'entrée du moule est de 265 °C, et la température à la paroi du moule est imposée à 40 °C.

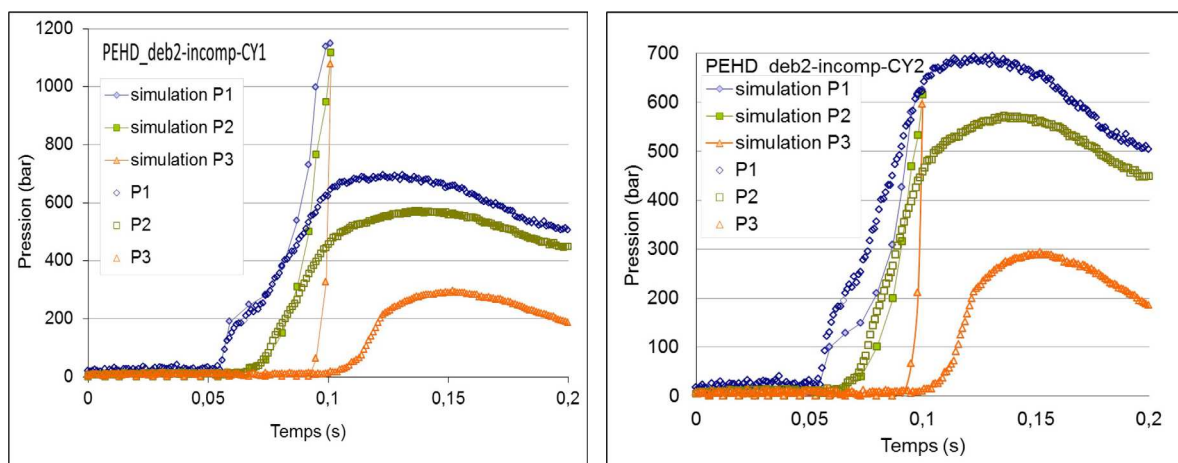
Nous comparons les résultats entre un calcul compressible et incompressible, et ce pour les deux lissages des courbes de viscosité, à savoir CY1 basé sur les mesures réalisées à faible taux de cisaillement, et CY2 basé sur l'ensemble des taux de cisaillement, y compris les valeurs élevées.

Les paramètres des calculs sont résumés par le Tableau 5-6. Trois débits différents ont été fixés sur trois intervalles de pourcentage de volume rempli. Le choix de ces paliers de débit sera discuté au paragraphe suivant.

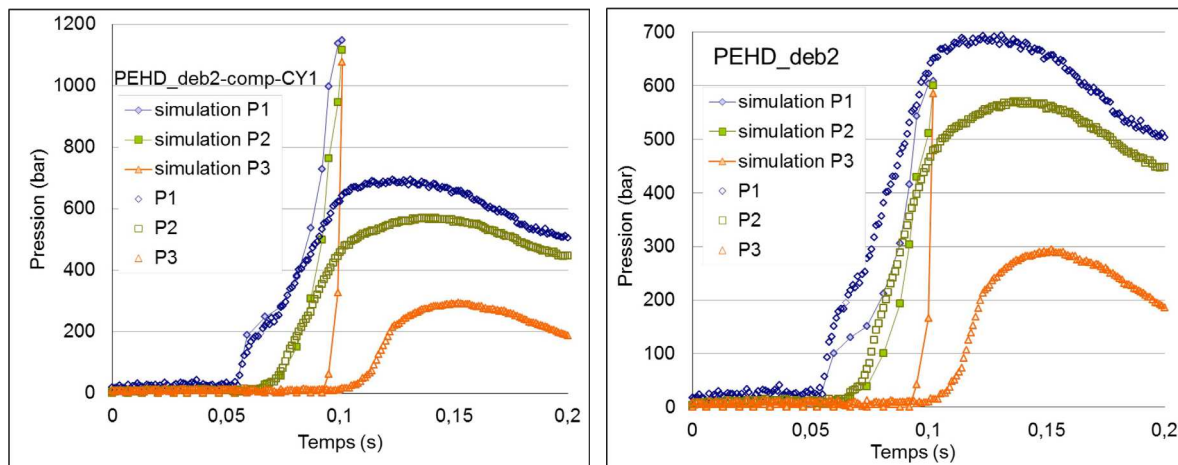
La Figure 5-38 et la Figure 5-39 présentent les profils de pressions expérimentaux superposés à ceux du calcul en utilisant les deux lois dans un cas de calcul incompressible puis compressible respectivement.

Nom du calcul	PEHD_deb2-incomp-CY1	PEHD_deb2-incomp-CY2	PEHD_deb2-comp-CY1	PEHD_deb2-comp-CY2
Prise en compte de la compressibilité	Incompressible	Incompressible	Compressible	Compressible
Remplissage au changement de débit (%)	58	58	58	58
	71,5	71,5	71,5	71,5
	100	100	100	100
Débit pour chaque palier ( $\text{mm}^3/\text{s}$ )	2300	2300	2300	2300
	2200	2200	2200	2200
	2100	2100	2100	2100

**Tableau 5-6 : Données variables de compressibilité et de rhéologie pour quatre cas de calcul**



**Figure 5-38 : Superpositions des courbes de pression expérimentales avec celles du calcul incompressible avec rhéologie CY1 (à gauche) et CY2 (à droite).**



**Figure 5-39 : Superpositions des courbes de pression expérimentales avec celles du calcul compressible avec rhéologie CY1 (à gauche) et CY2 (à droite).**

Nous ne nous attarderons pas ici sur les confrontations calcul – mesures, car les débits ne sont pas optimisés. Cette optimisation sera menée dans le paragraphe suivant. Nous notons que pour les deux rhéologies l’effet de la compressibilité n’est pas très visible.

### 5.3.4 Confrontations sur les pressions – PEHD

#### 5.3.4.1 Détermination des débits pour le calcul du PEHD

Le but ici est de synchroniser les démarrages des signaux de pressions détectées sur les trois capteurs issus de l’étude expérimentale avec ceux calculés sur les capteurs virtuels. Nous faisons varier pour cela les valeurs des paliers de débits dans le calcul.

Nom du calcul	deb2	deb4	deb5	deb6	deb7	deb8	deb9	deb10
Remplissage (%)	58	58	58	58	58	58	58	58
	71,5	71,5	71,5	71,5	71,5	71,5	76	76
	100	100	100	100	100	100	100	100
Débit (mm <sup>3</sup> /s)	2300	3000	3500	3900	4000	4000	4000	4000
	2200	2500	2100	2000	2200	2500	2500	3000
	2100	2000	1700	1500	1700	1500	1200	1500

**Tableau 5-7 : Pourcentages de remplissage pour chaque palier et débits correspondant pour différents cas de calcul.**



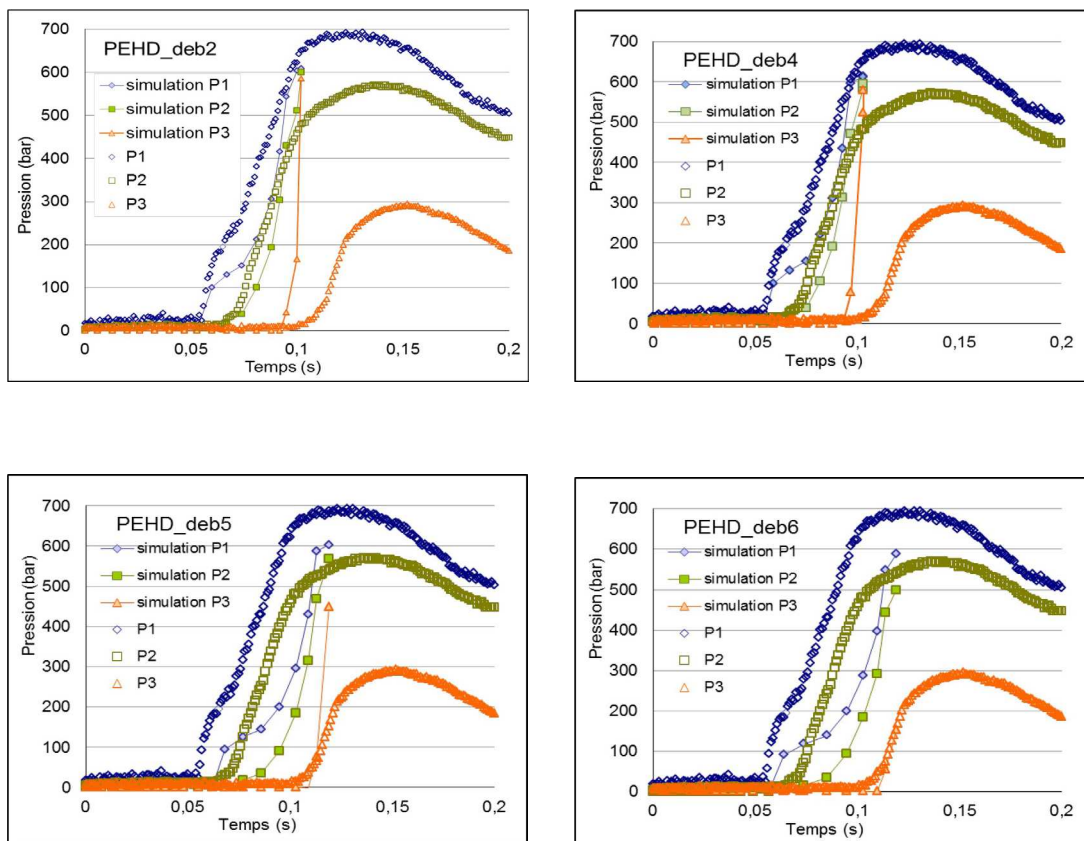
Le Tableau 5-7 résume les paramètres de débits pour les différents cas de calcul réalisés, que nous présentons sous forme de courbes de pression superposées avec les courbes expérimentales par la Figure 5-40.

Dans le cas des calculs *deb2* et *deb4*, les courbes de pressions  $P_1$  et  $P_2$  démarrent presque en même temps que pour le cas réel, alors que la courbe de pression  $P_3$  démarre plus tôt que celle du cas réel.

Nous augmentons progressivement le débit sur le premier palier et le réduisons sur le dernier palier pour les cas de calculs *deb5*, et *deb6*. La courbe de pression  $P_3$  colle mieux à la réalité alors que les courbes de pression  $P_1$  et  $P_2$  démarrent plus tard que le cas de référence.

Pour les calculs *deb7* et *deb8*, nous jouons sur la valeur de débit du palier de milieu et nous obtenons une très bonne corrélation des temps de démarrage des courbes de pression.

Nous continuons de varier les paramètres des paliers de débit, en augmentant dans les cas de calcul *deb 9* et *deb10* la largeur du deuxième palier. Nous obtenons des résultats similaires au cas *deb 8* avec de moins bonnes superpositions. C'est donc ce dernier débit que nous allons utiliser pour les confrontations.



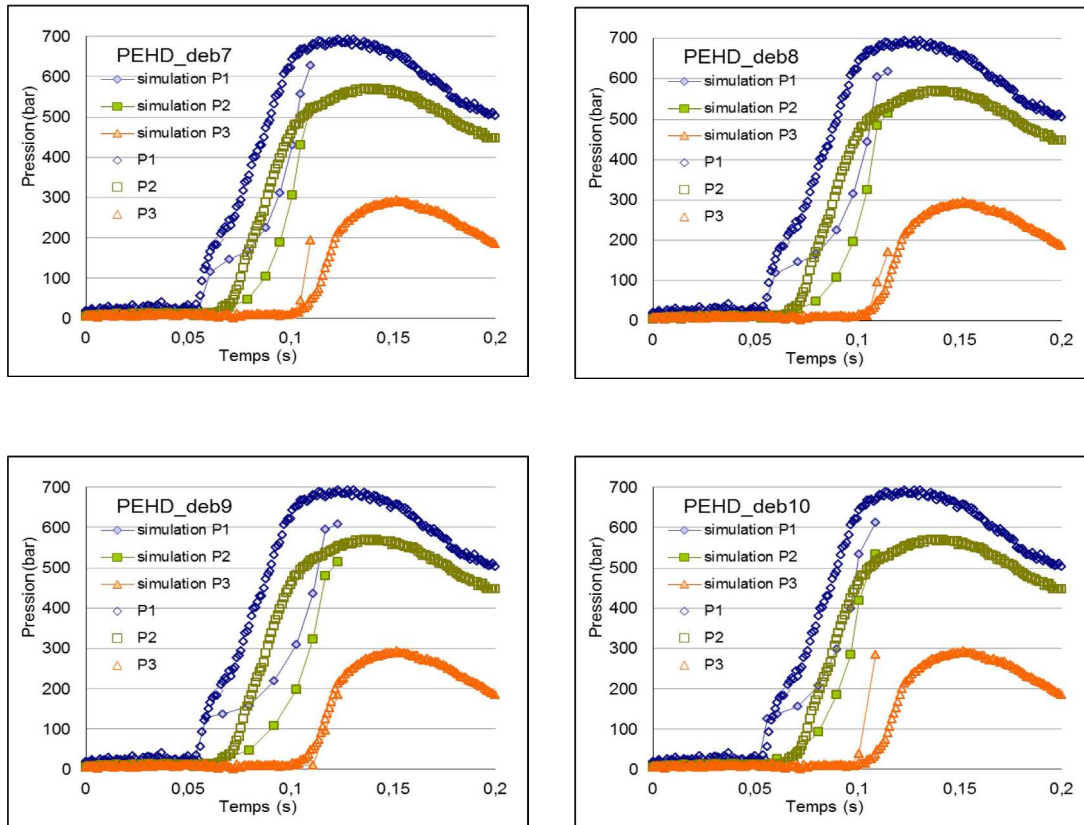


Figure 5-40 : Superpositions des courbes de pression expérimentales avec celles du calcul pour différents débits, PEHD

### 5.3.4.2 Confrontation calcul – mesures

Nous superposons les résultats de pression expérimentaux avec ceux des deux calculs suivant le lissage CY1 et CY2, Figure 5-41.

Nous constatons d'abord que les données CY1 conduisent à des pressions supérieures aux données CY2. En effet, ce dernier a un indice de pseudoplasticité très bas, la viscosité est inférieure.

Les évolutions des pressions  $P_1$  et  $P_2$  de la simulation avec CY1 suivent mieux les allures des courbes expérimentales au début du remplissage quand la matière passe le seuil. Puis en dévient en passant par-dessous les valeurs réelles lors du remplissage du film. Pour finir sur des valeurs de pression qui sont une fois et demie plus grandes que les valeurs expérimentales. Alors que le lissage de la loi rhéologique suivant CY2 donne des valeurs de



pression calculées en fin de remplissage qui sont proches de la mesure, mais qui la sous-estime en cours de remplissage.

Ceci laisse à penser que le comportement rhéologique de la matière est susceptible de changer au cours de l'écoulement. Néanmoins, le lissage CY2 est plus proche de la mesure. Ce lissage peut être considéré comme une viscosité apparente qui intègre échauffement, piezo dépendance, compressibilité et glissement. Notre calcul intègre compressibilité et échauffement, mais pas la piezodépendance, ni le glissement. Nous pouvons donc comprendre qu'il s'approche de la mesure, sans être parfaitement identique. Nous ne pouvons néanmoins affirmer avec certitude que le glissement existe en injection.

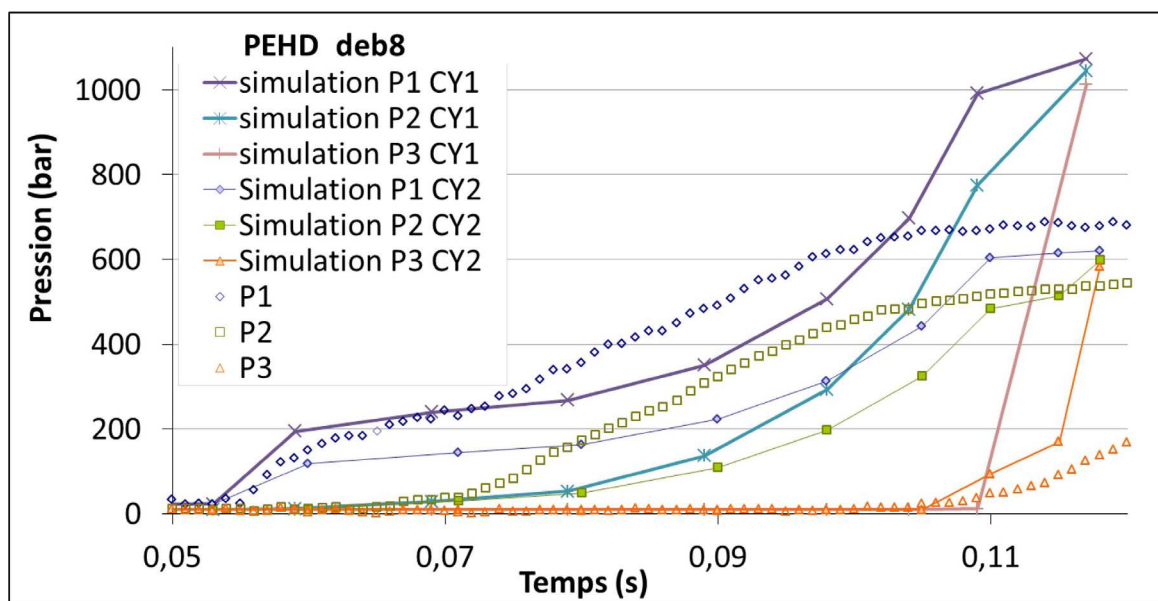


Figure 5-41 : Superposition des courbes de pression expérimentales avec celles du calcul selon les deux lissages de la loi CY1 et CY2, PEHD.

## 5.3.5 Confrontation pour le PMMA

### 5.3.5.1 Recherche des débits optimaux

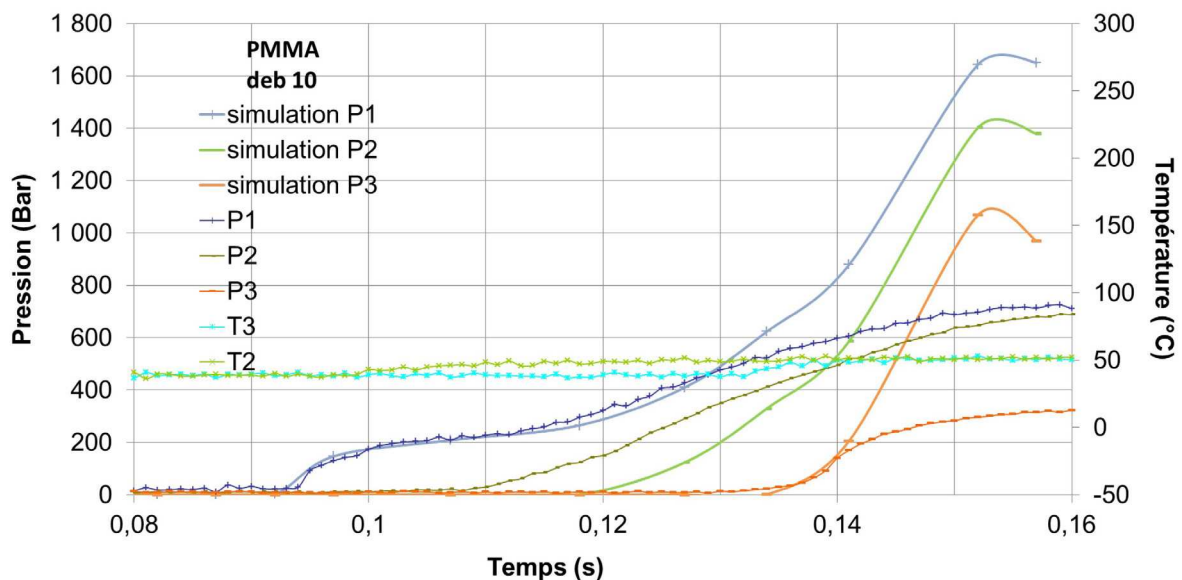
Comme précédemment, nous cherchons à synchroniser le démarrage des capteurs de pression. La température du polymère à l'entrée du moule est de 260 °C, et la température à la paroi du moule est imposée à 45 °C. Les paliers de débits sont choisis par rapport au pourcentage de remplissage qui correspond aux volumes respectifs de la carotte, du canal plus le seuil et du film. Les moyennes des débits sont comprises entre 2056.5 et 3645 mm<sup>3</sup>/s. Ces débits sont

supérieurs à ceux calculés dans la partie expérimentale car dans le calcul la compressibilité dans le pot de transfert de la presse n'est pas prise en compte.

Nom du calcul	deb1	deb2	deb3	deb10	deb11	deb12
	58	58	58	58	58	58
Remplissage (%)	71,5	71,5	71,5	76	71,5	71,5
	100	100	100	100	100	100
Débit (mm <sup>3</sup> /s)	4000	2300	4000	4000	4500	3000
	2000	2200	3800	3000	4000	2500
	1500	1500	3000	1500	3000	1000

**Tableau 5-8 : Pourcentages de remplissage pour chaque palier et débits correspondants pour différents cas de calcul.**

Nous présentons les superpositions des courbes de pression simulées et expérimentales, prises sur les capteurs  $P_1$ ,  $P_2$  et  $P_3$ , Figure 5-42 et Figure 5-43.



**Figure 5-42 : Superpositions des courbes de pression expérimentales avec celles du calcul débits *deb10*, PMMA**

La Figure 5-42 montre que les courbes de pression  $P_1$  et  $P_3$  simulées épousent bien le début des courbes expérimentales correspondantes, mais l'accord pour le démarrage de  $P_2/T_2$  est

mauvais. Le calcul se superpose parfaitement à la mesure jusqu'à ce que le capteur de température  $T_3$  réagisse. Au-delà, le calcul surestime énormément la mesure.

La Figure 5-43 montre que la simulation décrit bien le début des courbes de pression  $P_1$  et  $P_2$ , en revanche elle anticipe un peu le démarrage de la courbe  $P_3$ . Lorsque le capteur  $T_3$  réagit, le calcul est largement au-dessus de la mesure.

Même si nous n'avons pas trouvé une distribution de débit qui permet de synchroniser les démarrages des capteurs, nous pouvons voir que le calcul se met à surestimer notablement la mesure vers la fin du remplissage du film.

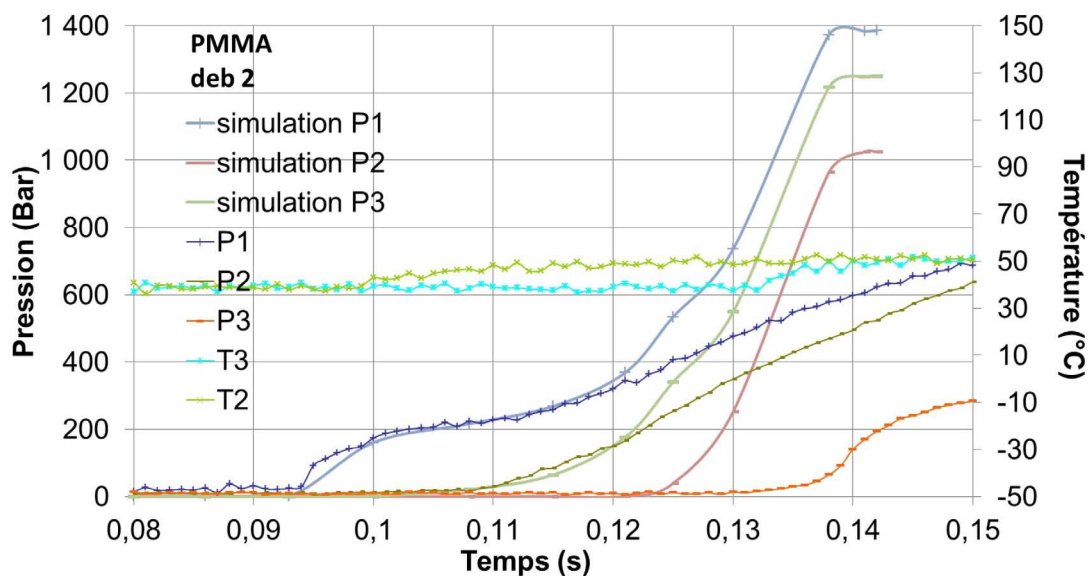


Figure 5-43 : Superpositions des courbes de pression expérimentales avec celles du calcul débits *deb2*, PMMA

Deux explications peuvent être possibles. La déformation élastique du moule n'étant pas prise en compte dans le calcul numérique, nous surestimons la valeur de la pression à la fin du remplissage, car le polymère s'écoule en réalité dans une cavité plus épaisse.

La deuxième hypothèse, est que la loi rhéologique et les conditions aux limites thermiques pris en compte dans la simulation ne rendent pas compte des phénomènes physique qui ont lieu dans le moule dans ces conditions de transformation. En effet dans le calcul, nous avons négligé le glissement à la paroi qui peut être apparaît en fin de remplissage dans la dernière marche d'escalier du moule. Nous considérons également une température de paroi imposée,

alors que nous avons vu au chapitre 4 que la forte thermodépendance du PMMA a un effet considérable sur l'évolution des pressions.

Enfin, nous n'avons pas pu réellement déterminer en rhéologie capillaire le comportement à fort taux de cisaillement et faible entrefer, et il est possible qu'il y ait un adoucissement de la viscosité dans le faible entrefer final de la pièce, comme cela a été rapporté dans la littérature.

## 5.4 Synthèse

Nous avons étudié l'injection de polymères dans une géométrie de film d'épaisseur théorique de 500, 300 et 200  $\mu\text{m}$ ., sous forme de marches descendantes dans le sens de l'écoulement. La presse d'injection utilisée a été conçue spécialement dans le cadre du projet ANR « Microconnect » qui porte la thèse. Elle permet un contrôle précis des volumes injectés dans des temps très courts. En effet, elle permet d'atteindre des vitesses d'injection importantes de l'ordre de 300 mm/s.

Nous avons utilisé pour l'étude expérimentale un moule instrumenté avec des capteurs de pression - température dans la pièce et un capteur de pression dans le canal d'alimentation. Nous avons travaillé avec deux matières, le PMMA et le PEHD, et nous avons fait varier les paramètres d'injection pour voir les différents comportements dans une situation de microinjection. Nous avons analysé les produits réalisés ainsi que les résultats des acquisitions de la machine.

Les pièces obtenues ont des épaisseurs plus importantes que les empreintes elles-mêmes. Ce phénomène peut être expliqué par le cédage du moule, qui face aux fortes pressions se déforme élastiquement pendant le remplissage. D'autres hypothèses sur l'expansion de la matière fortement compactée dans le moule ont été écartées.

Nous nous sommes principalement intéressés à la phase de remplissage. Nous avons quantifié l'influence des vitesses de remplissage sur les pressions et températures au niveau des différents capteurs. Lorsque le débit augmente, la pression décroît avec le PMMA, et est constante avec le PEHD. Nous pouvons en conclure que le comportement physique du matériau intervient dans ces conditions de transformations extrêmes.

Une étude de la simulation numérique de l'injection a été également réalisée. Nous avons utilisé le logiciel de simulation tridimensionnel Rem3D. Les résultats présentés ont été

effectués avec la version commerciale du logiciel (version 2010). Nous avons considéré les comportements du PEHD et du PMMA suivant une loi de Carreau Yasuda, une thermodépendance suivant la loi d'Arrhenius, un calcul compressible, sans piezodépendance et sans glissement à la paroi, avec des températures imposées en parois et en entrée. Nous avons confronté les résultats de la simulation avec ceux de l'étude expérimentale. Un point délicat est la détermination d'un profil de débit volumique en entrée de carotte qui permet de synchroniser le passage calculé du front sur les capteurs de pression avec le passage enregistré dans les expériences. En effet, le débit volumique est imposé dans l'expérience bien en amont du début de la zone de calcul, et la compressibilité du matériaux entre le piston d'injection et l'entrée dans la carotte joue un rôle. Nous obtenons néanmoins des corrélations qualitatives en bon accord.

Pour le PEHD, le lissage de la courbe rhéologique prolongée vers les hauts taux de cisaillement, CY1 décrit bien l'évolution de la pression pendant une bonne partie du remplissage, mais surestime nettement la pression en fin de remplissage. Le lissage CY2 décrit bien l'évolution de pressions en fin de remplissage, alors que transitoirement il sous-estime la pression. Ce dernier lissage peut être considéré comme une viscosité apparente (avec un indice de pseudoplasticité anormalement bas), car ne tenant pas compte de certains phénomènes physiques, qui sont également pour certains négligés dans le calcul. Il y a donc une certaine cohérence dans le fait que les pressions finales soient bien prédites par CY2.

Pour le PMMA, nous n'avons pas trouvé de profils de débit rendant compte parfaitement du démarrage des capteurs de pression. Néanmoins, nous pouvons s'accorder sur le fait que le calcul est très proche de la mesure pendant une bonne partie du remplissage, puis surestime largement les pressions mesurées en fin de remplissage. Ceci peut être dû à la condition aux limites en température imposée qui conduit sans doute à surestimer le refroidissement. Mais nous pouvons aussi supposer que le glissement intervient vers la fin du remplissage, ou bien que la viscosité « s'adoucit » dans la zone finale d'entrefer mince

## 6 Conclusion Générale

Nous avons étudié la rhéologie de deux matériaux, un PEHD semi-cristallin et un PMMA amorphe, dans un domaine étendu de fréquence ou de taux de cisaillement. Le PMMA s'est révélé assez délicat à caractériser, il montre des défauts d'extrudats, et les courbes obtenues en rhéologie capillaire encadrent la courbe maîtresse obtenue en rhéologie dynamique. Comme celle-ci couvre un large domaine de fréquence, elle a été choisie pour nourrir les calculs. Le PEHD présente aussi des instabilités. Nous avons estimé une vitesse de glissement à haut taux de cisaillement, mais les résultats obtenus, tout en étant physiquement acceptables, ne sont pas totalement avérés. C'est pourquoi nous avons finalement dépouillé de façon conventionnelle les mesures comme si les hypothèses nécessaires étaient satisfaites. Finalement, l'accord entre les deux techniques rhéométriques (dynamique et capillaire) est satisfaisant. Nous avons cependant été conduits à proposer deux lissages avec une loi de Carreau Yasuda : le lissage CY1 tient compte uniquement des points avant l'apparition du défaut oscillant. Il est donc assez fiable, mais il faudra extrapoler assez largement pour les calculs à haut taux de cisaillement. Le lissage CY2 tient compte de tous les points. L'indice de sensibilité à la vitesse de déformation est anormalement bas. Il s'agit d'une rhéologie apparente, qui inclue divers phénomènes (échauffement, glissement, piezodépendance, instabilités, inertie, viscoélasticité...)

Sur ces polymères, nous n'avons pas observé l'apparition d'un deuxième plateau newtonien, ni d'une remontée de la viscosité à très haut gradient de cisaillement comme rapporté dans la littérature. Les deux polymères présentent une énergie d'activation de la viscosité très différente, ce qui s'est avéré très riche d'enseignement dans la suite.

Nous avons développé un calcul d'écoulement capillaire visqueux, compressible, thermo- et piezo-dépendant, avec glissement à la paroi. Nous avons montré l'influence des différents phénomènes physiques séparés ou de façon couplée sur le comportement du polymère. Pour le PEHD, les différents phénomènes pris en compte conduisent à une évolution de pression peu différente de celle obtenue en négligeant tous les phénomènes, comme nous le faisons en dépouillement classique de rhéométrie capillaire. En revanche pour le PMMA, le couplage mécanique – thermique conduit à une évolution très différente, et les autres phénomènes sont secondaires. Nous calculons même des courbes contrainte à la paroi en fonction du taux de cisaillement pour différentes géométries (L, D) qui ne sont pas superposées, mais cela n'est

pas dû majoritairement au glissement. Nous avons ensuite calculé les courbes d'écoulement pour les deux polymères, avec la rhéologie CY1 pour le PEHD, puisque notre calcul tient compte de toutes les dépendances. La corrélation avec les courbes d'écoulement expérimentales est souvent moyenne à mauvaise. Les valeurs des paramètres introduits dans le calcul peuvent être mis en cause, comme ceux concernant la loi de glissement, mais nous pouvons penser aussi aux instabilités d'écoulement, à l'inertie non négligeable à fort taux de cisaillement, au caractère viscoélastique du matériau, dont nous ne tenons pas compte dans le calcul.

Nous avons développé en collaboration avec les partenaires du programme de recherche dans lequel s'inscrivait notre étude, une presse de microinjection originale et un moule de film d'épaisseur étagée. Nous avons montré qu'il était possible de réaliser des pièces de qualité ce qui est avéré par des mesures de pression, vitesse et de température bien reproductibles.

Nous avons introduit les données rhéologiques déterminées en rhéométrie capillaire et dynamique dans la modélisation de la phase de remplissage avec le logiciel de calcul Rem3D. Une des grandes difficultés est de déterminer le débit à l'entrée de la carotte du moule, condition d'entrée pour le calcul, qui doit permettre de synchroniser les démarrages des capteurs de pression (c'est-à-dire les instants de passage du front sur les capteurs). Nous ne pouvons en effet se fier au débit imposé par le piston d'injection compte tenu de la compressibilité du matériau.

La comparaison des mesures expérimentales et des calculs numériques révèlent d'une part que la progression du front de matière est correctement prédite, mais ceci n'est pas très probant compte tenu de la simplicité de la géométrie, et d'autre part que l'ordre de grandeur des pressions est correcte, mais que leurs évolutions au cours du cycle d'injection n'est pas conforme à l'expérience. Ceci signifie que le modèle physique décrivant la microinjection est encore insuffisant.

Le glissement n'a pas été introduit dans le calcul d'injection. Il n'est pas du tout évident que les lois de glissement, encore imparfaites, déduites de mesures dans le capillaire à haute température soit applicables à un moule froid dont l'état de surface peut être différent.

Le transfert thermique doit être amélioré, la prise en compte d'une température imposée à la surface du moule est sans doute une condition un peu forte. Une condition aux limites en coefficient de transfert thermique, équivalent à la prise en compte d'une résistance thermique

de contact, serait plus réaliste, même si la détermination de ce coefficient est délicate. Sans doute faudrait-il s'orienter vers un calcul couplé de l'écoulement dans la cavité et du régime thermique du moule, d'autant plus que celui-ci n'était pas régulé dans nos essais.

Enfin, les courbes d'établissement de la pression mesurées en capillaire révèlent un comportement viscoélastique du polymère qui aboutirait, en injection, à une diminution des pressions compte tenu des temps caractéristiques très courts du procédé de microinjection par rapport à un écoulement visqueux établi.





# Annexe

## A. Comportement en loi puissance

En toute généralité, la consistance est fonction de la pression  $p$  et de la température  $T(r,z)$ .

Le taux de cisaillement généralisé se réduit, dans le cadre des approximations de la

lubrification, à  $\left| \frac{\partial w}{\partial r} \right| = -\frac{\partial w}{\partial r}$  :

$$\eta = K \frac{\partial}{\partial r} \left( \frac{\partial w}{\partial r} \right)^{m-1}$$

Le tenseur des contraintes s'écrit alors :

$$\sigma = \begin{pmatrix} -p & 0 & K \frac{\partial}{\partial r} \left( \frac{\partial w}{\partial r} \right)^{m-1} \frac{\partial w}{\partial r} \\ 0 & -p & 0 \\ K \frac{\partial}{\partial r} \left( \frac{\partial w}{\partial r} \right)^{m-1} \frac{\partial w}{\partial r} & 0 & -p \end{pmatrix}$$

En négligeant les forces d'inertie et de gravité, et en utilisant les approximations de la lubrification hydrodynamique, les équations de Stokes se réduisent à :

$$\begin{aligned} \frac{\partial p}{\partial r} &= 0 \\ \frac{\partial p}{\partial \theta} &= 0 \\ \frac{\partial p}{\partial z} &= \frac{\partial}{\partial r} \left( K \frac{\partial}{\partial r} \left( \frac{\partial w}{\partial r} \right)^m \right) - \frac{K}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( \frac{\partial w}{\partial r} \right)^m \end{aligned}$$

La pression ne dépend que de  $z$ , et la troisième équation s'écrit :

$$\frac{dp}{dz} = - \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r K \left( \frac{\partial w}{\partial r} \right)^m \right)$$

D'où :

$$\frac{\partial w}{\partial r} = -\frac{D}{C} - \frac{r}{2K(r,z)} \frac{dp}{dz} (z) \rho_z^{1/m}$$

Nous intégrons cette équation pour déterminer le champ de vitesse, avec une condition de non glissement à la paroi :

$$w(r, z) = -\frac{r}{2} \frac{d}{dz} \left( \frac{1}{\eta} \frac{dp}{dz} \right) \int_0^R \frac{r'}{K(r', z)} dr' \quad (a)$$

### A.1. Incompressible, consistance thermo- et piezo-dépendante

Nous tenons donc compte de la piezodépendance de la viscosité, mais pas de la compressibilité, ce qui est physiquement contradictoire. Le débit volumique est donné par :

$$Q = \int_0^R w(r, z) 2\pi r dr = -\frac{1}{2} \frac{d}{dz} \left( \frac{1}{\eta} \frac{dp}{dz} \right) \int_0^R \int_0^R \frac{r' r}{K(r', z)} dr' dr$$

$$Q = \pi \frac{d}{dz} \left( \frac{1}{\eta} \frac{dp}{dz} \right) \int_0^R r^2 \frac{dr}{K(r, z)}$$

D'où :

$$\frac{dp}{dz} = -2 \frac{d}{dz} \left( \frac{1}{\eta} \frac{dp}{dz} \right) \frac{1}{\int_0^R r^2 \frac{dr}{K(r, z)}}$$

Nous ne pouvons intégrer rigoureusement cette équation, car la consistance dépend de la pression. Cependant, nous verrons par la suite que le calcul est mené avec des itérations entre mécanique et thermique. Nous pouvons donc considérer que la pression permettant d'obtenir la consistance est celle de l'itération précédente, et nous obtenons alors :

$$p(z) = -2 \int_z^L \frac{d}{dz'} \left( \frac{1}{\eta} \frac{dp}{dz'} \right) \frac{1}{\int_0^R r^2 \frac{dr}{K(r, z')}} dz'$$

L'équation (c) nous donne le champ de vitesse :



$\underline{C}$  $\underline{C}$  $\underline{\lambda}$  $\underline{\lambda}$ 

Dans les mêmes conditions d'intégration que précédemment, nous obtenons :

$$p(z) = 2 \int_0^R \frac{\rho(r, z) \left( \int_0^R \frac{1}{K(\tau, z)} d\tau \right)^{\frac{1}{m}}}{2\pi \int_0^R \rho(r, z) \left( \int_0^R \frac{1}{K(\tau, z)} d\tau \right)^{\frac{1}{m}} d\tau} r dr dz$$

Nous obtenons la vitesse en introduisant l'expression de  $\frac{dp}{dz}$  dans l'équation (a) :

$$w(r, z) = - \frac{\dot{m} \int_0^R \frac{1}{K(\tau, z)} d\tau}{2\pi \int_0^R \rho(r, z) \left( \int_0^R \frac{1}{K(\tau, z)} d\tau \right)^{\frac{1}{m}} d\tau} r dr$$

*Remarque :* si nous considérons une résolution en température moyenne, la consistance est telle que  $K(z) = K(p(z), \bar{T}(z))$ , et la masse volumique est telle que  $\rho(z) = \rho(p(z), \bar{T}(z))$ .

Les expressions précédentes deviennent :

$$\frac{dp}{dz} = -2K(z)R^{-1-3m} \frac{\dot{m}}{m} \frac{1}{\pi \rho(z)} \left( \int_0^R \frac{1}{K(\tau, z)} d\tau \right)^{\frac{1}{m}}$$

$$w(r, z) = \frac{3m+1}{m+1} \frac{\dot{m}}{\pi R^2 \rho(z)} \left( \int_0^R \frac{1}{K(\tau, z)} d\tau \right)^{\frac{1}{m+1}} r$$

La variation de la vitesse avec  $z$  est seulement fonction de  $\rho(p(z), \bar{T}(z))$ .

## B. Analyse incompressible, isotherme, viscosité en loi puissance non piezodépendante avec glissement

Nous nous basons sur un calcul simplifié en loi de puissance (détail des calculs en Annexe).

Pour l'initialisation des calculs itératifs mécanique-thermique, §4.3, nous considérerons un polymère suivant une loi puissance non piezodépendante, en isotherme. Nous allons déterminer l'équation permettant d'obtenir la vitesse de glissement, et les équations donnant les champs de pression, vitesse, gradient de vitesse. Ce calcul permettra également de valider les équations générales en les faisant dégénérer vers cette situation.

Les calculs complets sont détaillés en annexe.

L'intégration des équations de l'équilibre dynamique donne :

$$w(r, z) = -\frac{D}{C} - \frac{1}{2K} \frac{dp}{dz}(z) \frac{r^{1/m}}{m+1} + V_g \quad \text{Équation 6-1}$$

Compte tenu de ce champ de vitesse, le débit  $Q$  prend la forme :

$$Q = \pi \frac{m}{3m+1} \frac{D}{C} - \frac{1}{2K} \frac{dp}{dz}(z) \frac{r^{1/m}}{m+1} R^{1/m+3} + V_g \pi R^2$$

D'où  $dp/dz$  :

$$\frac{dp}{dz}(z) = -2K \frac{D}{C} \frac{Q - V_g \pi R^2}{\pi R^{1/m+3}} \frac{3m+1}{m} \quad \text{Équation 6-2}$$

$$\text{Et comme } \tau_p = -\frac{R}{2} \frac{dp}{dz}(z) = RK \frac{D}{C} (Q - V_g \pi R^2) \frac{3m+1}{m} \frac{1}{\pi R^{1/m+3}} = \alpha(R, z) V_g^n$$

nous obtenons l'équation suivante ( $\bar{V}$  est la vitesse moyenne qui permet de déterminer numériquement  $V_g$ ) :

$$\frac{D}{C} \frac{\alpha V_g^n}{K} \frac{1}{m} - \frac{3m+1}{mR} (\bar{V} - V_g) = 0$$



Si l'on prend  $m = 1$ , alors :  $\alpha V_g^n \pi \frac{R^4}{4K} + V_g \pi R^3 - QR = 0$ . Nous retrouvons l'expression de l'équation 4-22 avec loi visqueuse générale, dans laquelle nous prenons  $\eta = K$ .

Nous pouvons intégrer l'équation 4-25 pour avoir le champ de pression :

$$p(z) = 2K \frac{D}{C} (Q - V_g \pi R^2) \frac{3m+1}{m} \frac{1}{\pi R^{1/m+3}} \int_0^m (L-z) = 2K \frac{D}{C} (\bar{V} - V_g) \frac{3m+1}{m} \frac{1}{R^{1/m+1}} \int_0^m (L-z)$$

Si  $V_g = 0$ , alors nous retrouvons bien le champ de pression avec une loi puissance isotherme classique.

Les équations 4-24 et 4-25 donnent la vitesse :

$$w(r, z) = (\bar{V} - V_g) \frac{3m+1}{m+1} \frac{D}{C} \frac{1}{R} \frac{r^{1/m+1}}{R} \int_0^m + V_g$$

Le gradient de vitesse s'obtient à partir des équations 4-24 et 4-25 :

$$\frac{\partial w}{\partial r} = -(\bar{V} - V_g) \frac{3m+1}{mR} \frac{D}{C} \frac{r^{1/m}}{R} \int_0^m$$

# Notations

---

$a$  : diffusivité thermique  
 $a$  : paramètre de la loi Carreau-Yasuda  
 $a_T$  : facteur de glissement à une température T  
 $a_{TP}$  : facteur de glissement à une température T et une pression P  
 $b$  : entrefer  
 $C$  : couple résultant  
 $C$  : constante universelle loi de Tait  
 $C_1$  : constante de la loi WLF  
 $C_2$  : constante de la loi WLF  
 $D$  : diamètre  
 $De$  : nombre de Deborah  
 $E$  : énergie d'activation  
 $g$  : rayon de giration des molécules  
 $G$  : enthalpie libre d'activation  
 $G^*$  : module complexe  
 $G'$  : composante élastique du module complexe  
 $G''$  : composante visqueuse du module complexe  
 $h$  : constante de Planck  
 $H$  : demi entrefer  
 $h_T$  : coefficient de transfert thermique  
 $I$  : polydispersité du polymère  
 $L$  : longueur capillaire  
 $K$  : consistance  
 $k_B$  : constante de Boltzmann  
 $K_{exp}$  : consistance expérimentale  
 $m$  : indice de pseudoplasticité  
 $\dot{m}$  : débit massique  
 $m_{exp}$  : indice de pseudoplasticité expérimental  
 $Mn$  : masse moléculaire moyenne en nombre  
 $Mw$  : masse moléculaire en poids  
 $n$  : paramètre de la loi de glissement de Norton

$Q$  : débit  
 $R$  : rayon capillaire  
 $R_g$  : constante des gaz parfaits  
 $t$  : *temps*  
 $T$  : température  
 $T_g$  : température de transition vitreuse  
 $T_{ref}$  : température de référence  
 $\hat{T}$  : température moyenne  
 $V_g$  : vitesse de glissement  
 $V$  : volume spécifique  
 $V_{\diamond\diamond oy}$  : vitesse moyenne d'écoulement  
 $\alpha$  : paramètre de la loi de glissement de Norton  
 $\alpha_d$  : coefficient de dilatation  
 $\alpha_\eta$  : coefficient de thermodépendance de la viscosité  
 $\diamond\diamond_0$  : amplitude  
 $\dot{\gamma}$  : taux de cisaillement  
 $\dot{\gamma}_{app}$  : taux de cisaillement apparent  
 $\delta$  : déphasage  
 $\eta$  : viscosité  
 $\eta_0$  : viscosité au plateau newtonien  
 $\eta^*$  : viscosité complexe  
 $\lambda$  : temps caractéristique  
 $v$  : le volume d'une molécule  
 $\tau$  : contrainte cisaillement  
 $\tau_p$  : contrainte de cisaillement à la paroi  
 $\rho$  : densité  
 $\sigma$  : tenseur des contraintes  
 $\chi$  : angle d'orientation biréfringence  
 $\Delta n \cdot \cos \chi$  : biréfringence  
 $\chi$  : coefficient de piezodépendance  
 $\omega$  : pulsation

ABS : Acrylonitrile butadiene styrene

COC : cyclo oléfine copolymer

PA : polyamide

PC : polycarbonate

PEBD : polyéthylène basse densité

PEEK : Polyétheréthercétone

PFPE : perfluoropolyéther

PEHD : polyéthylène haute densité

PMMA : polyméthacrylate de méthyle

PP : polypropylène

**PS** : polystyrène

SAN : polystyrène acrylonitrile

UHMWPE : polyéthylène haute densité de haute masse moléculaire



# Références

---

- [1] N. P. Adhikari and J. L. Goveas, "Effects of slip on the viscosity of polymer melts," *Journal of Polymer Science Part B-Polymer Physics*, vol. 42, pp. 1888-1904, May 2004.
- [2] J.F. Agassant P. Avenas, J. Sergent, B. Vergne and M. Vincent, "La mise en forme des matières plastiques", *Techniques et Documentation – Lavoisier*, 1996
- [3] J. Aho and S. Syrjala, "Measurement of the Pressure Dependence of Viscosity of Polymer Melts Using a Back Pressure-Regulated Capillary Rheometer," *Journal of Applied Polymer Science*, vol. 117, pp. 1076-1084, Jul 15 2010.
- [4] C. Barus, "Note on the dependence of viscosity on pressure and temperature," *American Academy of Arts and Sciences*, vol 28, pp.13-18, 1891
- [5] D. M. Binding, M. A. Couch, and K. Walters, "The pressure dependence of the shear and elongational properties of polymer melts," *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, vol. 79, pp. 137-155, Nov 1998.
- [6] R. Cardinaels, P. Van Puyvelde and P. Moldenaers, "Evaluation and comparison of routes to obtain pressure coefficients from high-pressure capillary rheometry data," *Rheologica Acta*, vol. 46, pp. 495-505, Mar 2007.
- [7] S. C. Chen, R. I. Tsai, R. D. Chien, and T. K. Lin, "Preliminary study of polymer melt rheological behavior flowing through micro-channels," *International Communications in Heat and Mass Transfer*, vol. 32, pp. 501-510, Feb 2005.
- [8] L. Choplin and P. J. Carreau, "Excess pressure losses in a slit," *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, vol. 9, pp. 119-146, 1981.
- [9] J. Chu, A. Hrymak and M. R. Kamal, "Microstructural characteristics of micro-injection molded thermoplastics," *Annual Technical Conference Proceedings, Antec*, Dec 2007.

- [10] P. D. Coates, B. R. Whiteside, M. T. Martyn, R. Spares and T. Gough, "Micromoulding – Precision processing for controlled products," *Second International Conference on Multi-Material Micro Manufacture 4M*, Sep 2006.
- [11] M. A. Couch and D. M. Binding, "High pressure capillary rheometry of polymeric fluids," *Polymer*, vol. 41, pp. 6323-6334, Jul 2000.
- [12] M. Dal Molin, "Validation and optimization of FEM simulation of micro injection molded parts". Ph D Dissertation, MSc student thesis, Jan. 2007.
- [13] C. F. J. Den Doelder, R. J. Koopmans, and J. Molenaar, "Quantitative modelling of HDPE spurt experiments using wall slip and generalised Newtonian flow," *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, vol. 79, pp. 503-514, Nov 1998.
- [14] C. F. J. Den Doelder, R. J. Koopmans, J. Molenaar, and A. A. F. Van de Ven, "Comparing the wall slip and the constitutive approach for modelling spurt instabilities in polymer melt flows," *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, vol. 75, pp. 25-41, Feb 1998.
- [15] M.M. Denn, "Extrusion instabilities and wall slip," *Annual Revue Fluid Mechanics*, pp.265-287, 2001.
- [16] M. S. Despa, K. W. Kelly, and J. R. Collier, "Injection molding of polymeric LIGA HARMs," *Microsystem Technologies*, vol. 6, pp. 60-66, Dec 1999.
- [17] F. Dimier, B. Vergnes, and M. Vincent, "Relationships between mastication conditions and rheological behavior of a natural rubber," *Rheologica Acta*, vol. 43, pp. 196-202, Mar 2004.
- [18] V. Durand, B. Vergnes, J. F. Agassant, E. Benoit, and R. J. Koopmans, "Experimental study and modeling of oscillating flow of high density polyethylenes," *Journal of Rheology*, vol. 40, pp. 383-394, May-Jun 1996.
- [19] V. Durand, "Ecoulement et instabilité oscillante des polyéthylènes haute densité,". Ph D Dissertation, Ecole des Mines de Paris, Sophia-Antipolis, Dec. 1993.
- [20] N. El Kissi and J.M. Piau, "Rhéologie. Pour la transformation des polymères fondus", Proc GDR 901, IMG Grenoble, 171, Oct. 1991.

- [21] W. Friesenbichler, G. R. Langecker, I. Duretek and S. Schuschnigg, Polymer melt rheology at high shear rates using a new micro-rheology technique, " 7<sup>th</sup> Austrian Polymer Meeting, Graz, Austria, Jul. 2005.
- [22] A. Furukawa and H. Tanaka, "Violation of the incompressibility of liquid by simple shear flow," *Nature*, vol. 443, pp. 434-438, Sep 2006.
- [23] A. Gava, "Modeling of the micro injection molding process, " Ph D Dissertation, Universita'Degli Studi Di Padova, 2009.
- [24] K. Geiger, "Rheologische charakterisierung von EPDM kautschukmischungen mittels kapillar-rheometer systemen". *Kautsch Gummi Kunstst* 42:273- 283, 1989
- [25] V. G. Ghanta, B. L. Riise, and M. M. Denn, "Disappearance of extrusion instabilities in brass capillary dies," *Journal of Rheology*, vol. 43, pp. 435-442, Mar-Apr 1999.
- [26] J. Giboz, T. Copponnex, and P. Mele, "Microinjection molding of thermoplastic polymers: a review," *Journal of Micromechanics and Microengineering*, vol. 17, pp. R96-R109, Jun 2007.
- [27] S. Glasstone, .J. Laidler and H. Eyring, "The theory of rate processes: the kinetics of chemical reactions, viscosity, diffusion and electrochemical phenomena", *Nueva York, EUA : McGraw-Hill*, 1941.
- [28] C. A. Griffiths, "The effects of tool surface quality in micro-injection moulding," *Journal of Materials Processing Technology*, vol. 189, pp. 418–427, 2007.
- [29] A. Haddout and G. Villoutreix, "Polymer melt rheology at high shear rates," *International Polymer Processing*, vol. 15, pp. 291-296, Sep 2000.
- [30] S. Hasegawa and H. Yokoi, "Visualization of melt-flow behavior inside the runner in ultra-high speed injection molding," *International Polymer Processing*, vol. 21, pp. 464-472, Nov 2006.
- [31] S. G. Hatzikiriakos and E. Mitsoulis, "Slip Effects in Tapered Dies," *Polymer Engineering and Science*, vol. 49, pp. 1960-1969, Oct 2009.



- [32] G. Hay, M. E. Mackay, K. M. Awati, and Y. Park, "Pressure and temperature effects in slit rheometry," *Journal of Rheology*, vol. 43, pp. 1099-1116, Sep-Oct 1999.
- [33] G. Hay, M. E. Mackay, S. A. McGlashan, and Y. S. Park, "Comparison of sheer stress and wall slip measurement techniques on a linear low density polyethylene," *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, vol. 92, pp. 187-201, Aug 31 2000.
- [34] D. J. Henson and M. E. Mackay, "Effect of gap on the viscosity of monodisperse polystyrene melts- Slip effects", *Journal of Rheology*, vol. 39, pp. 359-373, Mar-Apr 1995.
- [35] K.M.B. Jansen, R. Pantani and G. Titomanlio, "As-molded shrinkage measurements on polystyrene injection molded products", *Polymer Engineering and Science*, **38**, pp. 254-264, 1998.
- [36] D. M. Kalyon and H. Gevgilili, "Wall slip and extrudate distortion of three polymer melts," *Journal of Rheology*, vol. 47, pp. 683-699, May-Jun 2003.
- [37] MR. Kamal, A. Isayev and SJ. Liu, "Injection molding. Technology and fundamentals". Hanser, Munich, pp. 599-651, 2009.
- [38] A. L. Kelly, T. Gough, B. R. Whiteside, and P. D. Coates, "High Shear Strain Rate Rheometry of Polymer Melts," *Journal of Applied Polymer Science*, vol. 114, pp. 864-873, 2009.
- [39] A. Kelly, T. Gough, and P. Coates, "High strain rate rheometry of polymer melts using an instrumented injection molding machine," in *Xvth International Congress on Rheology - the Society of Rheology 80th Annual Meeting, Pts 1 and 2*. vol. 1027, A. Co, L. G. Leal, R. H. Colby, and A. J. Giacomin, Melville: Amer Inst Physics, pp. 36-38, 2008.
- [40] A. Kelly, T. Gough, B. Whiteside, and P. D. Coates, "High Strain Rate Rheology of Polymer Melts," in *Novel Trends in Rheology Iii*. vol. 1152, M. Zatloukal, Melville: Amer Inst Physics, pp. 161-167, 2009.
- [41] O. Ketels, "La micro-injection : une affaire de spécialistes," *Plastiques flash*, vol. N° 041, pp. 12-13, 2008.

- [42] A. Kłozinski, T. Sterzynski, and Gs, "Evaluations of corrections in rheometric measurements of polyethylene. Part I. Slippage at channel wall," *Polimery*, vol. 52, pp. 583-590, 2007.
- [43] H. M. Laun, "Pressure dependent viscosity and dissipative heating in capillary rheometry of polymer melts," *Rheologica Acta*, vol. 42, pp. 295-308, Jul 2003.
- [44] H. M. Laun, "Capillary rheometry for polymer melts revisited," *Rheologica Acta*, vol. 43, pp. 509-528, Nov 2004.
- [45] N. Lebaal, S. Puissant, and F. M. Schmidt, "Rheological parameters identification using in situ experimental data of a flat die extrusion," *Journal of Materials Processing Technology*, vol. 164, pp. 1524-1529, May 15 2005.
- [46] H. Y. Lin and W. B. Young, "Analysis of the filling capability to the microstructures in micro-injection molding," *Applied Mathematical Modelling*, vol. 33, pp. 3746-3755, Sep 2009.
- [47] A. C. Liou and R. H. Chen, "Injection molding of polymer micro- and sub-micron structures with high-aspect ratios," *International Journal of Advanced Manufacturing Technology*, vol. 28, pp. 1097-1103, May 2006.
- [48] M. E. Mackay and D. J. Henson, "The effect of molecular mass and temperature on the slip of polystyrene melts at low stress levels," *Journal of Rheology*, vol. 42 (6), pp. 1505-1517, 1998.
- [49] P. Mourniac, "Le problème du glissement à la paroi dans les écoulements de mélanges d'élastomères". Ph D Dissertation, Ecole des Mines de Paris, Sophia-Antipolis, 1991.
- [50] K. S. Mriziq, H. D. Cochran, and M. D. Dadmun, "Rheology and birefringence of Fomblin YR at very high shear rates," *Rheologica Acta*, vol. 46, pp. 839-845, Jun 2007.
- [51] S. Nigen-Chaidron and G. Chaidron, "Rheology of Polymers in Micro Situation," presented at the 21st Annual Meeting of the Polymer Processing Society PPS, 2005.

- [52] L. Robert, B. Vergnes, and Y. Demay, "Flow birefringence study of the stick-slip instability during extrusion of high-density polyethylenes," *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, vol. 112, pp. 27-42, May 10 2003.
- [53] L. Robert, "Instabilité oscillante des polyéthylènes linéaires : observations et interprétations, ". Ph D Dissertation, Université de Nice Sophia-Antipolis, Dec 2001.
- [54] E. E. Rosenbaum and S. G. Hatzikiriakos, "Wall slip in the capillary flow of molten polymers subject to viscous heating," *Aiche Journal*, vol. 43, pp. 598-608, Mar 1997.
- [55] T. Sedlacek, M. Zatloukal, P. Filip, A. Boldizar, and P. Saha, "On the effect of pressure on the shear and elongational viscosities of polymer melts," *Polymer Engineering and Science*, vol. 44, pp. 1328-1337, Jul 2004.
- [56] L. Silva, J.F. Agassant and T. Coupez "Three dimensional injection molding simulation". In [37], 2009.
- [57] H. Takahashi, T. Matsuoka, and T. Kurauchi, "Rheology of polymer melts in high shear rate," *Journal of Applied Polymer Science*, vol. 30, pp. 4669-4684, Dec 1985.
- [58] H. Takahashi, T. Matsuoka, T. Ohta, K. Fukumori, T. Kurauchi and O. Kamigaito, "Rheological behavior of SAN PC blends under extremely high shear rate," *Journal of Applied Polymer Science*, vol. 37, pp. 1837-1853, Mar 1989.
- [59] N.W. Tschoegl, W.G. Knauss and I. Emri, "The Effect of Temperature and Pressure on the Mechanical Properties of Thermo- and/or Piezorheologically Simple Polymeric Materials in Thermodynamic Equilibrium – A Critical Review" *Mechanics of Time-Dependent Materials*, 6 pp. 53-99, Jun 2002.
- [60] S. Q. Wang and P. A. Drda, "Superfluid-like stick-slip transition in capillary flow of linear polyethylene melts .1. General features," *Macromolecules*, vol. 29, pp. 2627-2632, Mar 1996.
- [61] X. Wang, "Studies of HDPE ans LDPE extrudate distortions, " Ph D Dissertation, Ecole Polytechnique de Montréal, Apr. 1993

- [62] B. R. Whiteside, M. T. Martyn, P. D. Coates, P. S. Allan, P. R. Hornsby, and G. Greenway, "Micromoulding: process characteristics and product properties," *Plastics Rubber and Composites*, vol. 32, pp. 231-239, 2003.
- [63] B. R. Whiteside, R. Spares, K. Howell, M. T. Martyn, and P. D. Coates, "Micromoulding: extreme process monitoring and inline product assessment," *Plastics Rubber and Composites*, vol. 34, pp. 380-386, Nov 2005.
- [64] D. G. Yao and B. Kim, "Simulation of the filling process in micro channels for polymeric materials," *Journal of Micromechanics and Microengineering*, vol. 12, pp. 604-610, Sep 2002.
- [65] H. Yokoi, X. Han, T. Takahashi, and W. K. Kim, "Effects of molding conditions on transcription molding of microscale prism patterns using ultra-high-speed injection molding," *Polymer Engineering and Science*, vol. 46, pp. 1140-1146, Sep 2006.
- [66] L. Y. Yu, C. G. Koh, L. J. Lee, K. W. Koelling, and M. J. Madou, "Experimental investigation and numerical simulation of injection molding with micro-features," *Polymer Engineering and Science*, vol. 42, pp. 871-888, May 2002.
- [67] H. L. Zhang, N. S. Ong, and Y. C. Lam, "Mold surface roughness effects on cavity filling of polymer melt in micro injection molding," *International Journal of Advanced Manufacturing Technology*, vol. 37, pp. 1105-1112, Jul 2008.
- [68] J. Zhao, R. H. Mayes, G. Chen, P. S. Chan, and Z. J. Xiong, "Polymer micromould design and micromoulding process," *Plastics Rubber and Composites*, vol. 32, pp. 240-247, 2003.



## Rhéologie des polymères fondus à hauts taux de cisaillement ; application à la microinjection

**RESUME :** La rhéologie à hauts taux de cisaillement pour deux polymères, le PEHD semi-cristallin et le PMMA amorphe a été étudiée. Des outils de rhéométrie classique, un rhéomètre plan-plan en mode dynamique, et un rhéomètre capillaire, ont été utilisés dans des conditions extrêmes (avec des filières pour la rhéométrie capillaire de diamètres allant jusqu'à 0,3 mm) mais les dépouillements de ces résultats ont été faits suivant les hypothèses conventionnelles en négligeant les instabilités et les phénomènes physiques qui interviennent lors de ces écoulements. Nous avons par la suite développé un modèle mathématique de l'écoulement dans un capillaire pour rendre compte de l'importance des différents phénomènes physiques qui peuvent avoir lieu dans des écoulements extrêmes, à savoir l'échauffement et la piezodépendance de la viscosité, la compressibilité et le glissement à la paroi. Les résultats du modèle développé ont été comparés avec les résultats expérimentaux. Nous avons aidé au développement d'une presse de microinjection originale et nous l'avons testée avec un moule de plaque instrumenté d'épaisseur allant jusqu'à 0,2 mm. Nous avons montré qu'il était possible de réaliser des pièces de qualité ce qui est avéré par des mesures de pression, vitesse et de température bien reproductibles. Nous avons exploité les données rhéologiques expérimentales dans la modélisation de la phase de remplissage avec le logiciel de calcul Rem3D. Des corrélations entre les mesures expérimentales et les calculs ont été réalisées en comparant l'évolution des pressions dans le système d'alimentation et dans l'empreinte.

**Mots clés :** Rhéologie à hauts taux de cisaillement, microinjection, simulation par éléments finis, piezodépendance de la viscosité, thermodépendance de la viscosité, glissement à la paroi

### Polymer melts rheology at high shear rate; microinjection molding application

**ABSTRACT :** Rheology at high shear rate for both polymers, semi-crystalline HDPE and amorphous PMMA was studied. Classical rheometry tools, plane-plane dynamic mode rheometer and capillary rheometer, were used in extreme conditions (with channels diameters for capillary rheometry up to 0.3 mm). However, analyses of these results were made following conventional assumptions neglecting instabilities and physical phenomena involved in these flows. We then developed a mathematical model of a capillary flow in to reflect the importance of different physical phenomena that can occur in extreme flows, namely heating, pressure dependency of viscosity, compressibility and the wall slip. The results of the developed model were compared with experimental results. We helped develop a press microinjection original and we tested it with instrumented plate mold with thickness up to 0.2 mm. We have shown that it is possible to make quality parts which are proven by well reproducible pressure, speed and temperature measurements. We used the experimental rheological data in filling phase modeling with the calculation software Rem3D. Correlations between experimental measurements and calculations were carried out by comparing the pressure in the filling system and the cavity.

**Keywords :** High shear rate rheology, microinjection molding FEM, pressure dependent viscosity, temperature dependent viscosity, wall slip.